

SÉRIE A, N° 1000

N° D'ORDRE :

1024

- T H E S E S -

présentées

A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université
(mention Sciences)

par

Raphaël AMAT
licencié es Sciences

=====

1ère Thèse - Méthode de mesure absolue de l'activité des émetteurs β^-
par utilisation de scintillateur liquide.

2ème Thèse - Propositions données par la Faculté :

Soutenues le 20 Décembre 1962 devant la Commission d'Examen

Mr TEILLAC

Président

Mr BOUISSIERES

Examineurs

Mr RIOU

SÉRIE A, N° 1000

N° D'ORDRE :

1024

- T H E S E S -

présentées

A LA FACULTE DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université
(mention Sciences)

par

Raphaël AMAT
licencié es Sciences

1ère Thèse - Méthode de mesure absolue de l'activité des émetteurs β^-
par utilisation de scintillateur liquide.

2ème Thèse - Propositions données par la Faculté :

Soutenues le 20 Décembre 1962 devant la Commission d'Examen

Mr TEILLAC

Président

Mr BOUISSIÈRES

Examineurs

Mr RIOU



(Janvier 1962)

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE PARIS

- PROFESSEURS -

Doyen M. ZAMANSKY

G. JULIA	T Analyse supérieure et Algèbre supérieure	TRILLAT	T Microscopie et diffraction électronique
DE BROGLIE	T Théories physiques	VIEMANN	T Chimie organique et struc.
PRENANT	T Anatomie et Histologie comparées	JACQUINOT	T Spectroscopie et physique céleste (Orsay)
GRASSE	T Evolution des êtres organisés	VASSY	T Physique de l'atmosphère
PREVOST	T Chimie Organique	DESTOUCHES	T Théories Physiques
CHAUDRON	T Chimie appliquée	AMIEL	T Chimie générale
WYART	T Minéralogie et Cristal.	HOCART	T Minéralogie et Cristallog.
TEISSIER	T Zoologie	J.P. MATHIEU	T Physique (Optique)
MANGENOT	T Biologie Vég. (Orsay)	COUTEAUX	T Biologie animale (P.C.B.)
AUGER	T Physique quantique et Relativité	MAY	T Zoologie (Orsay)
MONNIER	T Physiologie Générale	CHOQUET	T Théorie des fonctions et Topologie
PIVETEAU	T Paléontologie	FELDMANN	T Biologie Végétale marine
ROCARD	T Physique (E.N.S.)	GUINIER	T Physique des Solides (Orsay)
CARTAN	T Mathématiques (E.N.S.)	JOST	T Physiologie comparée
LAFFITTE	T Chimie Générale	FORTET	T Calcul des Probabilités et Physique mathématique
FAVARD	T Géométrie supérieure	SCHWARTZ	T Calcul diff. et Intégral
COULOMB	T Physique du Globe	CHOUARD	T Physiologie Végétale
Mlle COUSIN	T Biologie Animale (SPCN)	MALAVARD	T Aviation (Tech. Aéronaut.)
CHRETIEN	T Chimie minérale	BRELOT	T Calcul diff. et intégral
DRACH	T Zoologie	NORMANT	T Synthèse organique générale
KASTLER	T Physique (E.N.S.)	BENARD	T Chimie Minérale
EPHRUSSI	T Génétique	BUYAT	T Botanique (E.N.S.)
RIVIERE	T Géologie SPCN et sédim.	DUGUE	T Statistiques mathématiques
GAUTHERET	T Biologie Vég. (P.C.B.)	SOULAIRAC	T Psychophysiologie
LUCAS R.	T Recherches Physiques	ULRICH	T Physiologie végétale
THOMAS A.	T Biologie cellulaire	MARECHAL	T Optique théorique et Appl.
ARNULF	T Optique appliquée	KIRRMANN	T Théories Chimiques
MORAND	T Physique Enseignement	CHADEFAUD	T Botanique
SOLEILLET	T Physique (P.C.B.)	Mlle LE BRETON	T Physiologie de la nutri.
FORTIER	T Mécanique exp. des Fluides	SALEM	T Mathématiques générales
DANJON	T Astronomie	LELONG	T Applic. de l'analyse à la géométrie
PETIT	T Biologie maritime	DEVILLERS	T Anatomie et Histologie Comp.
QUENEY	T Météorologie et dynamique atmosphérique	EHRESMANN	T Topologie Algébrique
GALLIEN	T Embryologie	FRANCON	T Physique (S.P.C.N.)
EICHHORN	T Botanique	GLANGEAUD	T Géographie phys. et Géologie dynamique.
DE CUGNAC	T Biologie Végétale (SPCN)	GODEMENT	T Mathématiques (M.P.C.)
Mlle CAUCHOIS	T Chimie Physique	PISOT	T Tech. Mathém. de la Phys.
THELLIER	T Physique du Globe	ROCH	T Géologie
L'HERITIER	T Biologie Générale (Orsay)	SCHATZMAN	T Astrophysique
GRIVET	T Radioélectricité (Orsay)	TERMIER	T Paléontologie stratig.
PONCIN	T Mécanique Générale	ZAMANSKY	T Mathématiques générales
DUBREUIL	T Arithmétique et théorie des Nombres	LENNUIER	T Physique (M.G.P.)
QUELET	T Chimie Organique	RIZET	T Génétique (Orsay)
CAGNIARD	T Géophysique appliquée	ROUTHIER	T Géologie appliquée
CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire	Mme TONNELAT	T Physique Théorique
CUVILLIER	T Micropaléontologie	DIXMIER	T Mathématiques (M.P.C.)
JUNG	T Pétrographie		

SOUCHAY	T Chimie générale	MAGAT	Physico-chimie des radio-éléments
AIGRAIN	T Electrotechnique gén.	Mlle QUINTIN	T Electrochimie
BRUSSET	T Chimie systématique	MONOD	T Chimie du métabolisme
M. LEVY	T Physique théorique des hautes énergies (Orsay)	BENOIT	T Physiol. Anim. (Orsay)
Mme CHAIX	T Chimie biologique	DE POSSEL	T Analyse numérique
Mme HUREL-PY	T Biologie végétale (PCB)	CHARLOT	T Chimie analytique
PIAUX	T Chimie (M.P.C.)	HAISSINSKY	T Radiochimie
BRUN	T Mécan. théorique des Fluides	LEMEE	T Physiol. Vég. BMPV (Orsay)
LEDERER	T Chimie biologique	GUERIN	T Chimie M.P.C. (Orsay)
Mme DUBREIL	T Mathém. (Agrégation)	CHATELET M.	T Chimie (P.C.B.)
Mme LELONG	T Mathématiques (E.N.S.)	JEAN	T Physique Nucléaire (Orsay)
BELLAI	T Géologie (S.P.C.N.)	MATTIER	T Physique S.P.C.N.
COTTE	T Physique électrique	MICHEL L.	Phys. Théor. des Htes Energies (Orsay)
DUBOIS J.E.	T Chimie organique	BERGERARD	T Zoologie (Orsay)
LAMOTTE	T Zoologie (E.N.S.)	BERTEIN	T Electronique (Orsay)
MICHEL A.	T Chimie minérale (Orsay)	BOUSSIÉRES	Chimie des Radioéléments (Orsay)
OLMER	T Energétique générale	Mme COUTURE	T Thermodynamique et Méc. Physique
ROUAULT	T Electricité (Orsay)	ELLENBERGER	T Géologie appli.s/ le terr
GAUTHIER	T Mécanique appliquée	FRANC	Biol. Animale (P.C.B.)
BARCHEWITZ	T Chimie Physique	SCHNELL	Botanique tropicale (Orsay)
BROSSEL	T Physique atomique	STOLKOWSKI	Physiologie générale
BUSER	T Physiologie comparée	ACHER	Chimie Biol. (Orsay)
CAMUS	T Physiologie Vég. BMPV	BAUDOIN	Biologie animale P.C.B.
CASTAING	T Physique (Orsay)	BEAUMONT	Biologie animale SPCN
CURIEN	T Minéralo. et Cristallog.	BLAMONT	T Géophysique Ionosphère
MOYSE	T Physiologie Vég. (Orsay)	BOURREAU	Botanique
NOIROT	T Evolution des Etres Org.	CURIE D.	Physique (M.G.P.)
PANNETIER	T Chimie générale (Orsay)	DURAND-DELGA	Géologie
POSSOMPES	T Zoologie	FREON	T Chimie organique (Orsay)
PULLMANN	T Chimie théorique	HELLER	T Physiologie végétale
TEILLAC	T Physique Nucl. et Radio.activité	TORTRAT	T Calcul des Probabilités
TONNELAT	T Biologie Physico-chim.	CAILLEUX	Géologie (S.P.C.N.)
VILLE	T Econométrie	MAGNAN	T Physique (S.P.C.N.)
WILLEMART	T Chimie (P.C.B.)	DAUDEL	T Mécanique ondulatoire appl. à la Chim. Théor. et à la Phys. Nucléaire
DODE	T Chimie (Orsay)	Mlle FOURCROY	Biol. Végétale (SPCN)
FREYMANN	T Recherches Physiques	Mme CHOQUET-	
GUINOCHE	T Biol. Vég. SPCN (Orsay)	BRUHAT	T Méc. Analytique et Méc. céleste
ROLLET	T Chimie (P.C.B.)	Mlle VEIL	Physiologie Générale
Mlle JOSIEN	T Chimie S.P.C.N.	LWOFF	T Microbiologie
CHEVALLEY	T Géométrie algébrique et théorie des groupes.	SIESTRUNCK	T Mécan. Phys. et Expérim.
ARNOULT	T Electronique (Orsay)	LACOMBE	T Métallur. des métaux Nucl.
CHAPELLE	T Physique (Orsay)	BROCHARD	T Physique P.C.B. (Orsay)
DELANGE	T Mathématiques (Orsay)	CABANNES	T Mécanique générale
DENY	T Mathématiques Gén. (Orsay)	LESIEUR	T Mathématiques MPC (Orsay)
GERMAIN	T Mécan. Théor. des Fluides	MAZET	T Mécanique générale (Orsay)
LUCAS G.	T Géologie	CAIRE	Géographie phys. et Géol. Dynamique
ALLARD	T Chimie Physique	COMOLET	T Mécanique des Fluides
BERTHELOT	T Phys. fondamentale des Hautes Energies (Orsay)	CORABOEUF	Physiologie Animale
BRICART	T Météorologie et phys. de l'atmosphère	DELLOUE	Physique de l'exosphère
Mme ALBE-FESSARD	T Psychophysiologie	GORENFLOT	Botanique II (Orsay)
FRIEDEL	T Physique des Solides (Ors)	HOUILLON	Biologie Animale P.C.B.
M. JULIA	T Etudes des Moléculaires naturelles complexes	JULLIEN J.	Chimie P.C.B.
LENDER	T Biol. Animale (SPCN) (Orsay)	MALGRANDE	T Tech. Math. de la Phys.
		OLIVIER	Antropologie
		NOZERAN	T Botanique II (Orsay)

BLANC-LAPIERRE Physique ENS (Orsay)
CHEVAUGEON T Botanique (Orsay)
KAHANE T Mathématiques (Orsay)

SAMUEL T Math. E.N.S. Féminines
KOURGANOFF T Astronomie (Orsay)
THIRY T Mécanique Céleste.

Secrétaire général R. POUILLAIN.

Je prie Monsieur le Professeur TEILLAC
qui a bien voulu patronner mon travail, de recevoir l'expression de ma
respectueuse gratitude.

Je tiens également à remercier Monsieur
le Professeur BOUISSIERES dont la compréhension et les conseils m'ont
été précieux.

- METHODE DE MESURE ABSOLUE -
DE L'ACTIVITE DES EMETTEURS β^-
PAR UTILISATION
DE SCINTILLATEUR LIQUIDE

=====

- T A B L E des M A T I E R E S -

Page

- <u>INTRODUCTION</u>	1
- <u>CHAPITRE I</u> - Généralités	3
1-1 - Caractéristiques de l'émission β^-	3
1-2 - Interaction avec la matière	5
1-3 - Moyens de détection - Difficultés	6
- <u>CHAPITRE II</u> - Méthodes de mesure	7
2-1 - Méthode de l'angle solide défini	7
2-2 - Comptages en géométrie 4π	8
2-3 - Méthode des coïncidences β, γ	9
- <u>CHAPITRE III</u> - Méthode de mesure utilisant un scintillateur liquide.	11
3-1 - Raisons du choix du détecteur - Difficultés inhérentes	11
3-2 - Principe de la détection	11
3-3 - Notion de rendement théorique	12
3-4 - Principe de la méthode de mesure	15
3-5 - Conditions d'application de la méthode	17
- <u>CHAPITRE IV</u> - Réalisation pratique	
4-1 - Détermination de la courbe de rendement	19
4-2 - Appareillage utilisé	21
4-3 - Opérations et calculs	23

-	<u>CHAPITRE V - Résultats</u>	<u>Page</u>
5-1	- Généralités	27
5-2	- Mesure des divers éléments en "échantillons étalons"	27
5-3	- Mesure des divers éléments en "solution étalon"	31
5-4	- Mesure des divers éléments en solutions d'activités inconnues	43
-	<u>CONCLUSION</u>	39
-	<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	40

- INTRODUCTION -

=====

La mesure de l'activité des émetteurs β^- présente un intérêt évident dans tout laboratoire s'intéressant de près ou de loin aux techniques nucléaires. Si cependant elle n'est parfois qu'un moyen, comme dans le cas des mesures de contrôle d'épaisseur en métallurgie par exemple, elle peut constituer une fin dans nombre de laboratoires d'analyse, d'étalonnage ...

Dans le premier cas, les méthodes de mesure, le plus souvent relatives, consistent alors essentiellement à comparer les indications données par le même appareil, dans des conditions les plus voisines possibles, pour une source de référence de même nature.

Dans le second cas, au contraire, il est presque toujours nécessaire de procéder à une mesure absolue qui permette d'exprimer la valeur de l'activité d'une source sans recourir à une comparaison directe avec une source de référence de même nature.

Nombre de chercheurs se sont penchés sur le problème de la mesure absolue de l'activité β^- et nous rappellerons brièvement dans le courant de cet exposé les solutions les plus intéressantes apportées à ce problème.

Nous avons développé une méthode donnant une précision suffisante (de l'ordre de 5 %) dans les cas les plus défavorables, tout en étant d'une mise en oeuvre très rapide et en ne demandant qu'une très faible spécialisation pour le personnel.

Nous pensons qu'elle est à même de rendre de grands services pour des mesures semi routinières en permettant d'obtenir une précision supérieure à celle généralement obtenue au prix d'un même effort.

Nous avons volontairement laissé de côté les émetteurs β^+ ainsi que les capteurs K, L ... ; leur nombre étant assez limité, leur mesure ressort beaucoup plus du cas particulier que d'un procédé général.

- C H A P I T R E I - =====

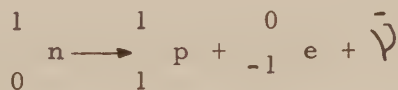
G E N E R A L I T E S

Pour pouvoir poser clairement le problème de la mesure absolue de l'activité des émetteurs β^- , il a paru tout d'abord nécessaire de rappeler les principales caractéristiques de cette émission et de l'interaction des électrons avec la matière.

Certaines difficultés en découlent directement pour la mesure absolue.

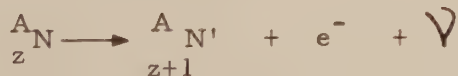
1 - 1. - Caractéristiques de l'émission $\beta^-(1, 2)$

La radioactivité β^- consiste en l'éjection d'électrons par les noyaux. Les lois de conservation de l'énergie, de la quantité de mouvement ... sont vérifiées. La conservation du spin en particulier impose l'émission d'une autre particule. Le processus élémentaire d'émission



fait intervenir le neutrino.

Plus généralement, pour un noyau émetteur ${}^A_z N$, on a



Soient alors $U(N)$ l'énergie du niveau fondamental de N , $U(N')$ celle du niveau (fondamental ou excité) de N' obtenu après l'émission

$$\Delta U = U(N) - U(N') = m_0 c^2 + E_0$$

$m_0 c^2$ étant l'énergie de l'électron au repos.

La répartition de l'énergie E_0 entre l'électron et le neutrino émis simultanément, peut être prédite grâce aux théories de Fermi, Gamow et Teller sur lesquelles nous reviendrons plus loin.

Les électrons présentent un spectre continu d'énergies s'étendant entre 0 et E_0 . L'énergie maximum E_0 est rarement supérieure à 3 MeV. Elle varie le plus souvent entre 150 keV (région du ^{14}C , ^{35}S , ^{95}Nb ...) et 2 MeV (région de l' ^{90}Y) (Figure 1).

Si la désintégration du noyau N conduit à un état excité du noyau N' , ce dernier se désexcite en émettant, soit un photon γ , soit un électron dit "de conversion". Lorsque la transition entre les deux niveaux N' est fortement interdite (accompagnée d'un changement de spin de plusieurs unités), le processus conversion est favorisé au détriment de l'émission " γ ".

Ces électrons ne proviennent pas du noyau N' mais de son cortège, aussi l'éjection d'un électron de conversion est suivie, soit par un photon X dit de fluorescence, soit par un autre électron dit "électron Auger".

Enfin, beaucoup plus rarement, on note la création de paires dans le champ du noyau: on a alors $\Delta U > 2m_0c^2$. ^{22}Na donne par exemple deux électrons de signes contraires au lieu d'un photon γ .

Ces divers processus donnent aux spectres d'énergie des électrons une forme tourmentée.

En effet, les électrons de conversion (ou Auger) préexistent dans les cortèges. Leur éjection ne donne pas lieu à l'émission concomitante d'un neutrino et par conséquent leur énergie est bien définie.

Le spectre d'énergie des électrons comportera donc souvent un certain nombre de raies se superposant à un fond continu (Figure 2).

Une dernière considération, importante, pour la mesure est celle de la durée de vie des niveaux excités. Cette durée, généralement très brève (de l'ordre de 10^{-10} à 10^{-13} secondes) peut parfois être relativement longue (plusieurs minutes, heures, jours,...) L'état excité est alors dit métastable.

Alors que dans le premier cas on a coïncidence" entre l'émission β^- et l'émission de photons ou d'électrons (les temps de résolution des appareils courants ne permettant pas la séparation des phénomènes) dans le second cas, il n'y a plus coïncidence entre les diverses émissions.

-2. - Interaction avec la matière (1, 3)

Nous n'aborderons ici que les interactions obtenues pour les électrons d'énergies comprises entre 1 et 3.000 keV. En effet, sauf pour les émetteurs "mous", c'est-à-dire à E_0 faible (^3H , ^{241}Pu , ...), la fraction des électrons émis avec une énergie inférieure à 1 keV est pratiquement négligeable.

- 2-1 Les électrons pénétrant dans la matière perdent de l'énergie et sont diffusés.
- 2-2 Les effets de diffusion simple, multiple ou "généralisée" (c'est le cas où la valeur moyenne de l'angle de diffusion reste constante quelle que soit l'épaisseur de matière traversée) perturberont la propagation rectiligne des électrons émis par la source.
- 2-3 La perte d'énergie par interactions avec les électrons des cortèges conduit, soit à l'ionisation, soit à l'excitation des atomes. C'est elle qui permettra la détection de l'émission.
- 2-4 La perte d'énergie par rayonnement (bremsstrahlung) est le plus souvent négligeable sauf pour les électrons d'énergie élevée pénétrant dans une matière lourde (^{90}Y , d'énergie $E_0 = 2,26 \text{ MeV}$ dans du plomb par exemple).

1 - 3.- Moyens de détection - Difficultés

1-3-1 - L'ionisation crée dans un volume de matière (détecteur) un grand nombre d'électrons et d'ions positifs, qui, accéléérés par un champ électrique, entre les armatures d'un condensateur chargé par exemple, modifient la différence de potentiel entre les armatures. On obtient une impulsion de tension (proportionnelle ou non à l'énergie perdue par la particule initiale dans le détecteur) pour chaque particule ayant pénétré dans le détecteur. C'est le principe des chambres d'ionisation et des compteurs (proportionnel ou Geiger).

1-3-2 - Les ions créés, ainsi que les électrons initiaux peuvent également exciter les atomes du détecteur qui, en revenant à leur état initial, émettront des photons lumineux ou UV. Ceux-ci tombant sur la photo cathode d'un tube photomultiplicateur engendreront une impulsion de tension à la sortie de ce tube. C'est le principe des compteurs à scintillation.

1-3-3 - Dans les deux cas, la détection des particules sera tout d'abord fonction de la géométrie source-détecteur, c'est-à-dire fonction du nombre de particules qui auraient atteint le volume sensible du détecteur si la propagation rectiligne des particules n'avait pas été perturbée et si ces particules avaient eu une énergie suffisante pour l'atteindre.

En pratique, de nombreuses particules seront diffusées soit dans la source elle-même (auto-diffusion), soit dans son support (rétrodiffusion), soit dans la matière séparant la source du détecteur. Elles n'atteindront pas ce dernier alors que leur direction d'émission le permettait, ou au contraire l'atteindront alors que leur direction d'émission ne le permettait pas.

Par suite de la répartition spectrale de l'énergie des électrons, ceux dont l'énergie est faible pourront être absorbés, soit par la source elle-même (auto-absorption), soit par la matière séparant la source du détecteur ; enfin ils perdront parfois trop peu d'énergie dans le détecteur pour engendrer une impulsion de tension assez grande pour être détectée.

La mesure absolue devra donc tenir compte de ces différents effets, diffusions et absorptions, ou chercher à les supprimer.

L'émission concomitante d'électrons ou de photons γ entraînera également un certain nombre de corrections, notamment dans le cas d'états excités métastables.

- C H A P I T R E I I - =====

Méthodes de mesure -----

Les sources à mesurer sont généralement obtenues à partir de solutions radioactives qui sont presque toujours dites "sans entraîneur". Nous y avons cependant ajouté une certaine quantité de matière inactive (entraîneur) lorsque l'élément actif risquait de s'adsorber sur les parois du récipient de mesure.

Les méthodes de mesure sont le plus souvent basées sur l'emploi de compteurs. On utilise également les scintillateurs solides et surtout liquides. Certaines de ces méthodes sont applicables à la mesure de la quasi totalité des émetteurs ($4\pi\beta$ Geiger ou proportionnel par exemple), d'autres faisant appel aux techniques dites de coïncidence sont limitées à certains émetteurs.

2 - 1. - Méthode de l'angle solide défini

Pratiquement abandonnée, elle ne nécessitait qu'un appareillage restreint : compteur à fenêtre mince du type Geiger, pré-amplificateur, échelle de comptage. Son principe est le suivant : une source ponctuelle pouvant occuper diverses positions sur l'axe du compteur, on limite le faisceau de particules reçu par le détecteur au moyen d'un diaphragme parfaitement usiné. On a ainsi un "angle solide défini" (Figure 3).

On rend négligeable les diffusions en écartant au maximum les divers supports du trajet des particules. La rétrodiffusion est évitée par l'emploi de films minces (de l'ordre de $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$) comme supports de source.

On trace alors la courbe d'absorption totale (absorption plus diffusion par la matière séparant la source du volume sensible du détecteur). Cette courbe est une exponentielle dans les conditions de la mesure. L'extrapolation de la courbe permet alors de tenir compte de l'absorption.

Le compteur étant sensible à des énergies très faibles, (toute particule atteignant le volume sensible du détecteur est comptée), on a d'assez bons résultats pour les émetteurs à schéma de désintégration simple, tels que le ^{32}P ou ^{90}Y .

La méthode a de nombreux inconvénients.

La réalisation de sources ponctuelles homogènes et sans épaisseur est pratiquement impossible en raison de la présence inévitable d'une faible quantité d'entraîneur dans les solutions. L'auto absorption n'est alors pas négligeable pour les émetteurs mous, ^{35}S par exemple.

Par suite du faible rendement géométrique de l'installation (de l'ordre de 10^{-3}) les solutions initiales doivent être amenées à une activité assez importante de l'ordre du millicurie par centimètre cube pour être aisément mesurables.

Enfin, dans le cas d'émission complexe, il n'est pas possible d'évaluer les corrections. Ainsi la courbe d'absorption ne pourra pas s'appliquer à la fois aux particules β^- et aux électrons de conversion monocinétiques.

2-2. - Comptages en géométrie 4π (7, 8, 9, 10, 11)

Pour accroître le rendement de l'installation et s'affranchir des corrections de diffusion et d'absorption, on a mis au point des compteurs, dits " 4π ".

2-2-1 - Compteurs proportionnels et Geiger

Ils sont généralement constitués par deux demi-compteurs identiques entre lesquels sont placées les sources. Ils sont généralement du type "à circulation de gaz" et fonctionnent soit en Geiger, soit en proportionnel (Figure 4).

La source est déposée sur un film mince métallisé pour éviter la formation de charges d'espace.

Le rendement géométrique est sensiblement égal à l'unité. Les particules étant émises à l'intérieur même du volume sensible, ne sont plus que très peu soumises aux effets de diffusion et d'absorption et sont toutes comptées. Une méthode basée sur des comptages successifs dans chaque demi-compteur puis dans l'ensemble de l'appareil (10) permet la détermination de corrections d'absorption dans le support mince de la source. La précision est bonne jusqu'à des énergies assez basses (supérieures à 300 keV environ).

La méthode donne d'excellents résultats. Cependant, on est toujours gêné par l'épaisseur de la source (non ponctuelle, mais de diamètre faible) et l'auto absorption.

Par ailleurs, la fabrication des supports et des sources est longue et délicate.

2-2-2 - Compteurs à scintillation

De même que dans le cas précédent, on cherche à s'affranchir des corrections en plaçant la source dans le détecteur. On utilisera deux disques de plastique scintillant par exemple ou un scintillateur liquide, où sera dissout un certain volume de solution active.

L'inconvénient majeur du procédé est l'assez faible sensibilité du détecteur. Il faut parfois une perte d'énergie non négligeable pour engendrer une impulsion décelable. Il faut donc déterminer le rendement du détecteur, toutes les particules atteignant ce dernier n'étant pas obligatoirement comptées. Par contre, le problème de l'auto absorption est totalement supprimé dans le cas du scintillateur liquide.

La détermination rapide et suffisamment précise du rendement de détection fait l'objet de notre étude.

2-3. - Méthode des coïncidences β^- , γ (12, 13)

Elle ne peut s'appliquer qu'à des émetteurs dont l'émission β^- est suivie d'une émission γ .

On compte à la fois les rayons β^- et γ à l'aide de compteurs appropriés et les coïncidences entre ces deux compteurs.

Au prix de nombreuses hypothèses simplificatrices, le principe peut être ainsi schématisé.

Soit un noyau émettant un rayon β^- et un rayon γ en coïncidence pour chaque désintégration. Supposons que tous les photons γ aient la même probabilité de détection par le compteur " γ " et que leur probabilité de détection par l'autre compteur soit nulle, et supposons que le compteur " γ " ne compte pas les rayons β^- , ces deux conditions étant assez facilement réalisées dans la pratique.

Soient N_β , N_γ et N_c les taux de comptage des compteurs β , γ et des coïncidences ; en appelant ϵ_i et ϵ_j les probabilités de détection de chacune des particules et N_0 le nombre de désintégrations, on aura :

$$N_\beta = \sum_{i=1}^{N_0} \epsilon_{i\beta}$$

$$N_\gamma = \sum_{j=1}^{N_0} \epsilon_{j\gamma}$$

$$N_c = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \epsilon_{i\beta} \epsilon_{j\gamma} \delta_{ij}$$

δ_{ij} étant le symbole de Kronecker.

Si alors $\epsilon_{j\gamma} = \epsilon_{\gamma}$ quel que soit j (hypothèse précédente.)

$$N_{\gamma} = N_o \epsilon_{\gamma} \text{ et } N_c = \epsilon_{\gamma} \sum_{i=1}^N \epsilon_{i\beta}$$

D'où $N_c = \epsilon_{\gamma} \cdot N_{\beta}$

et $N_o = \frac{N_{\gamma}}{\epsilon_{\gamma}} = \frac{N_{\gamma} \cdot N_{\beta}}{N_c}$

Dans la pratique, le problème est beaucoup plus complexe et de nombreuses corrections doivent être apportées. Cependant, si le détecteur β a un rendement très voisin de l'unité, ces corrections deviennent presque toutes négligeables (13).

Divers ensembles $4\pi\beta$ (Geiger, proportionnel ou scintillateur), γ ont été développés.

Les résultats obtenus sont excellents mais cette méthode n'est applicable que dans un nombre limité de cas.

Elle est utilisée cependant de préférence au comptage simple 4π , lorsque les corrections d'absorption dans la source elle-même et son support deviennent importantes.

- C H A P I T R E III -

=====

Méthode de mesure utilisant un scintillateur liquide (14, 15, 16, 17)

3 - 1. - Raisons du choix du détecteur. Difficultés inhérentes

Comme nous l'avons vu plus haut, le fait de placer la source à l'intérieur même du volume sensible du détecteur permet de s'affranchir de la diffusion et de l'absorption. L'utilisation d'un liquide scintillant dans lequel est dissouté la solution active, répond bien à cette condition. En effet, en dehors de l'effet "dit de paroi", c'est-à-dire de la perte d'efficacité provenant des particules β^- s'échappant du flacon sans avoir été détectées, le rendement géométrique de la détection est égal à l'unité (cet effet de parois est d'ailleurs négligeable dans le cas qui nous occupe comme nous le verrons plus loin).

En outre, les noyaux émetteurs β^- se trouvant directement au contact des atomes détecteurs, tout effet d'auto-diffusion et d'auto-absorption dans la source disparaît.

Il semblerait donc que le comptage en scintillateur liquide soit la méthode la plus séduisante. Malheureusement, alors que toute particule pénétrant dans un compteur à gaz est détectée dès qu'elle y a perdu une énergie très faible (de l'ordre du keV), il n'en est pas de même pour un ensemble à scintillation. Il faut alors introduire ici la notion d'efficacité de détection.

Cette efficacité varie avec l'énergie d'émission, la composition chimique de la solution à mesurer, le type installation utilisée,...

Le problème est donc de la déterminer à chaque mesure.

3 - 2. - Principe de la détection

La solution scintillante est constituée d'un solvant presque toujours organique (toluène, xylène, dioxane, ...) et d'un soluté ou scintillateur (paraterphényle, diphenyl - 2, 5 oxazole ou (PPO), phényl-2 α -naphtyl - 5 oxazole ou (α NPO), p-[(phényl - 5 oxazolyl)^{1,3} - 2] benzène ou (POPOP) . Dans cette solution scintillante est dissoute la solution à mesurer (parfois au moyen d'artifices : mélange ternaire eau, éthanol, toluène par exemple).

Les particules β^- émises excitent directement (ou après ionisation pour une très faible part) les atomes du solvant. Cette excitation est transmise, par divers processus assez peu

expliqués, aux atomes du soluté qui émettent des photons visibles ou UV en revenant à l'état initial.

Une faible part de l'énergie de la particule conduit à cette émission de photons (on estime par exemple qu'une particule de 6 keV cause l'émission d'environ 30 à 40 photons lumineux, soit l'équivalent d'une centaine d'eV).

Ces photons, grâce à divers dispositifs réflecteurs sont dirigés sur la photocathode d'un tube photomultiplicateur qu'ils atteignent pour la plupart. Certains de ces photons arrachent alors un photo électron à la photocathode. Un ou plusieurs photo électrons arrachés sont accélérés et multipliés par le tube. Le courant résultant, proportionnel au nombre initial de photo électrons produit une impulsion de tension aux bornes d'une résistance de charge. Cette impulsion convenablement amplifiée actionne un discriminateur à seuil. Ce dernier engendre une impulsion de hauteur et de forme constante qui est comptée par une échelle.

3 - 3. - Notion de rendement théorique

Il est donc a priori évident qu'une particule ne pourra être comptée que si sa perte d'énergie dans le détecteur a pu conduire à l'arrachage d'au moins un photo électron à la photocathode du tube.

Cette perte d'énergie limite ne peut être fixée a priori; en effet, lors du processus élémentaire d'émission de lumière, différents phénomènes inhibiteurs interviennent. C'est ce qu'on appelle le "quenching" dans la littérature anglo-saxonne.

Nous ne nous étendrons pas sur ces divers phénomènes.

Mais par suite de leur existence, le rapport du taux de comptage observé à l'activité de l'échantillon que nous appellerons rendement, varie d'une mesure à l'autre.

Il a paru commode de déterminer ce rendement à partir de considérations relatives à l'énergie dont doit disposer en moyenne une particule pour engendrer, dans des conditions données, au moins un photo électron.

Cette énergie est appelée par certains auteurs (17, 15) "facteur de conversion, ou figure de mérite".

Pour nous, nous avons préféré déterminer ce rendement à partir d'une énergie limite de détection grâce aux considérations suivantes.

Le nombre de photons émis dans le scintillateur dépend évidemment de l'énergie qui y est perdue par la particule β lors de la désintégration. Cette énergie est sensiblement celle de la particule, sauf à proximité des parois du flacon échantillon ou

lorsque l'énergie de la particule est très importante (nous verrons plus loin l'effet correspondant à cette limitation). On observe alors une fluctuation gaussienne du nombre de photons autour d'une valeur moyenne proportionnelle à l'énergie perdue. Cette fluctuation est relativement faible, le nombre de photons produits étant élevé sauf pour les énergies très faibles.

Les photons, émis pour chaque désintégration en des points différents du flacon échantillon, auront plus ou moins de chance d'atteindre les photomultiplicateurs par suite de l'absorption, du "quenching" ou de la géométrie. Une fluctuation plus importante que la précédente mais encore faible interviendra donc.

Enfin, après avoir atteint les photocathodes, certains photons seulement provoqueront l'arrachage de photo électrons et une nouvelle fluctuation gaussienne autour d'une valeur moyenne (environ 1 photo électron pour 10 photons ayant atteint la photo cathode) viendra s'ajouter aux précédentes.

Cette fluctuation sera la plus importante étant donné le faible rendement quantique de la photo cathode.

Représentons alors la réponse du système pour un grand nombre de désintégrations. Portons en abscisse l'énergie des particules β^- émises lors des désintégrations et en ordonnée, le nombre de photo électrons arrachés aux photocathodes, pour chacune de ces particules ; cette représentation est constituée par des séries de points groupés par niveaux d'ordonnée 1, 2, ... : photo électrons, ces niveaux étant peuplés d'une manière plus dense autour de valeurs discrètes $e, 2e, \dots$ de l'énergie (la densité étant d'autant plus grande d'ailleurs que n est plus élevé par suite de la diminution de la valeur relative des fluctuations).

Il est alors l'énergie dont doit disposer en moyenne une particule pour engendrer dans des conditions données, n photo électrons.

Nous conviendrons alors de relier ces niveaux régulièrement (voir figure 5). Nous prendrons pour abscisse des bonds 0 à 1 photo électron, 1 à 2 photo électrons ... les valeurs $e/2, 3e/2, \dots (n - 1/2)e$.

L'énergie $e/2$ sera appelée dorénavant "l'énergie limite de détection".

Nous poserons que toutes les particules ayant une énergie inférieure à cette énergie limite ne pourront être comptées, toutes les autres le seront sûrement.

Considérons alors avec Swank, Horrocks et Studier (15, 17) un nouvel ensemble de détection constitué par un flacon contenant une solution radioactive dans un liquide scintillant et deux tubes photomultiplicateurs placés symétriquement par rapport au flacon (voir figure 6). Si l'on évite les pertes de lumière au moyen de dispositifs réflecteurs appropriés, la lumière produite dans le flacon est en moyenne également répartie entre les deux tubes.

Si donc une particule β^- dissipe dans le scintillateur une énergie suffisante pour engendrer n photo électrons $a, b, c, d, \dots, n$, leur répartition entre les deux photocathodes pourra être $(0, n), (1, n-1), (2, n-2), \dots (j, n-j), \dots (n-1, 1), (n, 0)$.

Considérons la répartition $(j, n-j)$. Le nombre de distributions différentes possibles pour les divers photo électrons $a, b, c \dots n$ sera C_n^j

Le nombre total de distributions pour les différentes répartitions sera alors :

$$\sum = C_n^0 + C_n^1 \dots + C_n^j \dots + C_n^{n-1} + C_n^n$$

Ce qui peut s'écrire, d'après la formule du binôme de Newton.

$$\sum = (1 + 1)^n = 2^n$$

Si nous comptons alors les impulsions de coïncidences entre les deux tubes, c'est-à-dire celles qui sont obtenues simultanément à la sortie des deux tubes, et uniquement celles-là, nous ne compterons pas les distributions $(0, n)$ et $(n, 0)$.

Le rendement du dispositif sera donc :

$$r_{cn} = \frac{2^n - 2}{2^n} = 1 - 2^{1-n}$$

pour les particules ayant l'énergie suffisante pour engendrer en moyenne n photo électrons. Pour un émetteur β donné, le nombre de photo électrons engendrés par une particule est en moyenne proportionnel à l'énergie de cette particule.

Soit alors $e/2$ l'énergie limite de détection pour une mesure donnée. Les particules d'énergie comprise entre $(n - 1/2)e$ et $(n + 1/2)e$ engendreront donc n photo électrons. Si nous connaissons le spectre d'énergie de l'émetteur, nous connaissons les nombres $N(je)$ de particules susceptibles d'engendrer j photo électrons et d'être comptées avec le rendement $r_{cj} = 1 - 2^{1-j}$

En effectuant une sommation sur tout le spectre, nous aurons alors le rendement de l'appareil en coïncidence :

$$R_{c(e)} = \sum_{j=1}^p N(je) (1 - 2^{1-j})$$

avec : $(p - 1/2)e < E_0 < (p + 1/2)e$

E_0 étant l'énergie maximum des particules émises.

Considérons alors le comptage "voie unique", c'est-à-dire séparément sur chaque chaîne. Si nous admettons que les deux chaînes de détection sont identiques, de la même manière, le tube ne donnera une impulsion que si la lumière arrache au moins un photo électron à sa photo cathode et nous ne compterons pas la distribution (0, n).

Le rendement du tube sera donc :

$$r_n = \frac{2^n - 1}{2^n} = 1 - 2^{-n}$$

pour les particules d'énergie comprises entre $(n - 1/2)e$ et $(n + 1/2)e$ et par conséquent, le rendement de chaque chaîne :

$$R_e = \sum_{j=1}^p N(je) (1 - 2^{-j})$$

3 - 4. - Principe de la méthode de mesure

Le spectre étant normalisé, si $e/2$ est assez petit devant E_0 et c'est toujours le cas sauf pour les émetteurs très mous, tels ^3H et ^{241}Pu , les nombres $N(je)$ seront très petits devant l'unité.

Si nous appelons N_0 le nombre normalisé de particules d'énergie inférieure à $e/2$, N_1 le nombre de particules d'énergie comprise entre $e/2$ et $3e/2$, ... N_i le nombre de particules d'énergie comprise entre $(i - 1/2)e$ et $(i + 1/2)e$...

On a :

$$R = 1/2 N_1 + 3/4 N_2 + 7/8 N_3 + \dots + \frac{2^p - 1}{2^p} N_p$$

ou encore :

$$R = 1 - N_0 - (1/2 N_1 + 1/4 N_2 + \dots + \frac{1}{2^p} N_p)$$

De la même manière :

$$R_c = 1/2 N_2 + 3/4 N_3 + \dots + \frac{2^{p-1} - 1}{2^{p-1}} N_p$$

$$R_c = 1 - N_0 - N_1 - (1/2 N_2 + 1/4 N_3 + \dots + \frac{1}{2^{p-1}} N_p)$$

Appelons alors "facteur de coïncidence" f le rapport $\frac{R}{R_c}$. Cherchons à déterminer l'allure de la variation de R_c en fonction de f .

Les termes N_i sont très voisins les uns des autres, tout au moins pour ceux dont les indices sont les plus faibles et les coefficients relativement élevés. N_0 est voisin de $N_1/2$ et on a $2N_0 \neq N_1$ quel que soit i assez faible.

On peut alors écrire en première approximation :

$$R \neq 1 - N_0 - (N_0 + 1/2 N_0 + \dots + \frac{1}{2^p} N_p)$$

les termes à indices élevés étant associés à des coefficients très petits ; on aura alors :

$$R \neq 1 - 3 N_0$$

On aura de même :

$$R_c \neq 1 - 5 N_0$$

Posons alors $1 - 5 N_0 = Y$ et $\frac{1 - 3 N_0}{1 - 5 N_0} = X$.

Par substitution de N_0 , il vient :

$$Y = \frac{2}{5X - 3}$$

La fonction $Y = f(X)$ est donc parfaitement définie, continue et uniformément décroissante pour tout X supérieur à $3/5$.

L'allure de la variation de R_c en fonction de f est sensiblement la même que celle de Y en fonction de X .

Si notre appareil nous donne alors les taux de comptage N et N_c en comptage voie unique et en coïncidence, le rapport $\frac{N}{N_c}$ est précisément égal au facteur de coïncidence f .

Si nous avons pu tracer une représentation de R_c en fonction de f , la connaissance de f nous donnera automatiquement la valeur de R_c , et ce d'une manière unique.

Nous pouvons donc déterminer l'activité de notre solution par la simple mesure des taux de comptage et l'utilisation d'une courbe théorique.

3 - 5. - Conditions d'application de la méthode

Les procédés ci-dessus ne pourront évidemment être utilisés que si chaque chaîne de détection est capable de dénombrer les impulsions dues à l'arrachage d'un seul photo électron.

En agissant sur le gain de l'ensemble amplificateur et sur la très haute tension appliquée au tube photomultiplicateur, il sera possible en théorie d'obtenir une impulsion d'amplitude supérieure au niveau du seuil du discriminateur, donc dénombrable, même pour un seul photo électron initial.

En effet, lorsque l'on augmente la très haute tension, l'amplitude des impulsions augmente. Si l'on part d'une valeur faible de la tension, on ne dénombrera que les impulsions correspondant à un grand nombre de photo électrons. La tension croissant, on comptera les impulsions dues à un nombre de photo électrons plus faible et enfin, celles dues à un seul photo électron. Une augmentation ultérieure de la tension ne modifiera plus le taux de comptage.

La courbe représentative de la variation du taux de comptage en fonction de la très haute tension appliquée, devra donc présenter un palier comme celle d'un compteur.

Cette condition n'est pas toujours remplie de façon satisfaisante.

En effet, nous avons vu que la difficulté majeure du comptage absolu β réside dans la distribution spectrale de l'énergie des particules. L'énergie dépensée par celles-ci dans le détecteur, peut (surtout dans le cas du scintillateur liquide où la perte d'énergie est quasi totale), varier entre de larges limites. Les hauteurs d'impulsions résultantes couvrent alors une large gamme et les amplificateurs sont le plus souvent saturés. Par exemple, si l'on admet une énergie limite de détection de l'ordre de 10 keV pour du phosphore 32, d'énergie maximum 1700 keV, les hauteurs d'impulsion varieront dans un rapport 1 à 10^2 ou 2.10^2 . Si l'impulsion minimum a une hauteur de l'ordre d'une dizaine de volts après amplification, l'impulsion maximum saturera 10 à 20 fois l'amplificateur dont la sortie est de l'ordre de 100 volts au maximum. En fait, parfois les surcharges peuvent atteindre plusieurs centaines de fois la valeur de la saturation. .

Par suite des différentiations des impulsions initiales dans les chaînes amplificatrices, les impulsions obtenues à la sortie des amplificateurs, présentent le phénomène dit "overshoot" ou "dépassement". Chaque impulsion normale est alors suivie par une impulsion parasite plus faible. Ces dépassements sont amplifiés lors de surcharges importantes au point qu'ils arrivent à franchir le seuil des discriminateurs (voir photographie n° 1). Ceux-ci délivrent alors plusieurs impulsions pour une seule impulsion initiale. C'est le phénomène du "dédoublément des impulsions" (double-pulsing).

Il n'est souvent plus possible alors d'obtenir un palier sur la courbe représentative du taux de comptage en fonction de la très haute tension (voir figure n° 7).

Cependant, ce phénomène se présente beaucoup moins souvent lors des comptages en coïncidence. En effet, le nombre des photo électrons arrachés à chaque photo cathode est rarement le même pour une désintégration donnée. Les impulsions initiales n'ont donc pas la même amplitude. Après amplification, les fronts de montée des impulsions de dédoublement, non identiques, ne coïncident alors plus et sont séparés d'une fraction de microseconde généralement. Si le temps de résolution du système de coïncidence est inférieur à cette valeur, les fronts initiaux donneront naissance à une impulsion de coïncidence, les fronts de dédoublement n'en donneront pas.

La gêne introduite par le dédoublement des impulsions incite certains auteurs à renoncer alors à compter toutes les impulsions provenant d'un seul photo électron. Ils se contentent de compter celles provenant de deux ou trois photo électrons et plus par exemple.

Horrocks et Studier utilisent un spectromètre pour construire le spectre intégral des amplitudes des impulsions. Ils extrapolent à l'origine la courbe ainsi obtenue et prennent la valeur extrapolée comme nombre d'impulsions de un photo électron et plus.

Mais par suite du principe même des appareils utilisés, le spectre des amplitudes n'est pas du tout conforme au spectre des énergies de l'émission β^- . L'extrapolation, basée sur la constatation que le spectre tracé est linéaire sur une certaine partie voisine de l'origine, reste sujette à caution.

Enfin, en raison du dédoublement des impulsions qui apparaît dès que l'énergie maximum de l'émission atteint quelques centaines de keV, le spectre est assez peu linéaire.

Nous avons donc cherché à mettre au point un appareillage permettant le comptage en voie unique pour les impulsions de un photo électron et plus sur la voie choisie, et le comptage en coïncidences de un photo électron et plus sur chaque voie sans dédoublement d'impulsion. L'amplificateur doit donc être du type dit non saturable (non overloading) ou plus exactement à déformations réduites et récupération rapide.

- C H A P I T R E I V - =====

R E A L I S A T I O N P R A T I Q U E -----

4 - 1. - Détermination de la courbe de rendement

4-1-1 - Détermination du spectre d'énergie des particules émises par un noyau donné

Cette opération est faite à l'avance pour chaque émetteur. Certains spectres ont été publiés, mais il faut le plus souvent les construire.

Pour cela il est tout d'abord nécessaire de connaître le schéma de désintégration du noyau émetteur ainsi que les énergies maximum E_0 des émissions β^- correspondantes (dans le cas d'une émission complexe en particulier, les spectres seront construits pour chaque émission puis ajoutés les uns aux autres). Il faut ensuite déterminer la forme du spectre : "permise" ou "interdite". Ces renseignements sont le plus souvent connus ; sinon, des considérations sur les règles de sélection permettent de déterminer le degré d'interdiction (22).

Les émetteurs les plus courants ont d'ailleurs des spectres permis : ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S , ^{45}Ca , ^{60}Co , ^{95}Nb , ^{198}Au , ou une fois interdits : ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{137}Cs .

La théorie de la désintégration β émise par Fermi et développée par Gamow et Teller (23, 24) permet d'obtenir le nombre d'électrons d'énergie donnée E en fonction de l'énergie et du moment de la particule.

$$N(E) = k C(E) F(Z, W) p W (E_0 - E)^2$$

où :

- k est une constante arbitraire
- $C(E)$ un coefficient dépendant de l'interdiction
- $F(Z, W)$ la fonction de Fermi (donnée par des tables)
- z le numéro atomique du noyau émetteur
- W l'énergie totale de la particule en unités de $m_0 c^2$
- p le moment de la particule
- E l'énergie de la particule
- E_0 l'énergie maximum d'émission

On a alors $C(E) = 1$ pour les spectres permis,
 $C(E) = W^2 - 1 + (E_0 - E)^2$ pour les spectres une fois interdits.

Comme on a :

$$W = \frac{E}{m_0 c^2} + 1 \quad \text{et} \quad p = \sqrt{W^2 - 1}$$

il est possible d'exprimer $N(E)$ uniquement en fonction de Z , E et E_0 .

On pourra donc utiliser cette formule pour tracer le spectre.

Une méthode simple graphique due à MARSHALL (22) permet un tracé rapide. Les spectres différentiels une fois tracés sont alors intégrés puis normalisés.

4-1-2 - Détermination de la variation de R_c en fonction de $f = \frac{R}{R_c}$

On choisit une énergie limite $e/2$. On en déduit les quantités $N_0, N_1, \dots, N_p$ en utilisant le spectre normalisé. On calcule $R_{(e)}$ et $R_{c(e)}$ ainsi que $f_{(e)}$ au moyen des formules du paragraphe 3-1-4.

On fait alors varier l'énergie limite $e/2$. On obtient différentes valeurs de R_c et f qu'il suffit de reporter sur un graphique.

Pour des émetteurs très mous tels que le tritium, on fait varier $e/2$ par bonds de 1 ou 0,5 keV entre 0 et 5 keV par exemple. Pour des émetteurs plus durs, on se contente de bonds de 5 keV ou plus, suivant l'énergie maximum du spectre. Il suffit d'un nombre limité de points (inférieur à 10) ; f varie alors entre 1 et 3, R_c entre 1 et 0,15.

4-1-3 - Cas particulier

L'efficacité théorique ainsi déterminée ne tient compte que de l'émission β^- proprement dite. Elle s'applique parfaitement aux émetteurs β^- purs. Par contre, si le noyau émet également des photons γ et des électrons de conversion, le problème se complique du fait de la possibilité de détection de ces particules.

Si l'état excité donnant naissance à l'émission γ a une durée de vie très brève, le photon n'aura de chance d'être détecté que si le β^- le précédant ne l'a pas déjà été. La probabilité de détection sera le produit de deux probabilités, la première (non détection du β^-) est rarement supérieure à 0,2, la seconde est encore plus faible, le faible volume de liquide absorbant assez peu le rayonnement gamma. La correction à apporter sera le plus souvent négligeable. Si par contre, l'état excité est métastable, la probabilité de détection ne sera plus fonction que de l'efficacité

de détection du rayonnement gamma. La correction à apporter ne pourra plus être déterminée.

Si cependant lors de cette transition, le rayonnement est fortement converti, les électrons de conversion pourront être traités comme les particules β^- émises par le noyau initial (à condition bien entendu que les noyaux émetteurs soient en équilibre ^{137}Cs , $^{137\text{m}}\text{Ba}$ par exemple).

L'énergie des électrons de conversion étant le plus souvent supérieure à plusieurs dizaines de keV, il suffira de les introduire lors de la normalisation du spectre (sans préjuger de la forme de leur spectre propre) car leur efficacité de détection sera sensiblement égale à l'unité (mono énergétique). De toute manière, le cas particulier est étudié chaque fois qu'il se présente.

4 - 2. - Appareillage utilisé

L'appareillage utilisé est un ensemble commercialisé TRICARB (PACKARD) ou CARBOTRIMETRE (LIE BELIN) ayant subi certaines modifications.

Ces appareils comportent un ensemble de détection consistant en deux tubes photomultiplicateurs suivis de préamplificateurs contenus dans un meuble frigorifique et une armoire électronique contenant deux amplificateurs, des échelles de comptage, une horloge et diverses alimentations.

L'ensemble de détection est logé dans un château de plomb destiné à le protéger de la radioactivité extérieure. Un logement circulaire aux parois réfléchissantes contient le flacon échantillon. Les tubes photomultiplicateurs sont placés face à face de part et d'autre du flacon.

Les deux chaînes identiques, tube, préamplificateur, amplificateur, sont suivies chacune d'un discriminateur rapide à seuil, destiné à éliminer le bruit de fond électronique et à mettre en forme l'impulsion. Ces discriminateurs sont reliés à un circuit classique de coïncidence qui ouvre deux portes lorsque les deux discriminateurs ont délivré simultanément un signal. Les signaux issus des discriminateurs peuvent alors actionner les échelles.

Diverses possibilités sont offertes à l'expérimentateur pour l'aiguillage des impulsions. L'une des deux chaînes est suivie généralement d'un système de potentiomètres définissant trois seuils ou deux fenêtres. On peut alors procéder à des déterminations de spectres intégraux ou différentiels.

Le montage des deux chaînes en coïncidence est destiné à l'origine, à réduire le bruit de fond dû aux tubes photomultiplicateurs. En effet, les électrons, arrachés aux photo cathodes par les photons et provenant d'une même désintégration, engendrent des impulsions non séparables dans le temps par l'appareil, donc

en coïncidence. Par contre, les impulsions dûes à l'effet thermoionique des premières dynodes sont aléatoires et par conséquent, hors le cas de coïncidence fortuite, seront bien séparées dans le temps. Le comptage en coïncidence permet alors l'élimination de la majeure partie du bruit de fond.

En outre, l'ensemble de détection étant placé dans une armoire frigorifique, le bruit de fond sera également réduit. Il est à noter que le refroidissement des tubes permet une augmentation sensible de la hauteur des impulsions (18, 19).

Le premier appareil utilisé, un TRICARB, était équipé de photomultiplicateurs DUMONT 6292. La THT appliquée pouvait varier entre 650 et 1450 volts environ (par bonds de 80 volts le plus souvent). Les préamplificateurs avaient un gain de 30 et les amplificateurs équipés d'atténuateurs à 5 positions (1, 1/2, 1/4, 1/8, 1/16) un gain d'environ 3000.

Les courbes représentant la variation du taux de comptage en fonction de la THT présentaient d'assez bons paliers lors du comptage "coïncidence" pour les émetteurs d'énergie supérieure à 300 keV. Par contre, même en utilisant le gain et la THT maximum, les paliers étaient très médiocres pour le ^{14}C et n'existaient pas pour le ^3H .

En comptage "voie unique" aucun palier ne pouvait être obtenu car le phénomène du dédoublement des impulsions apparaissait avant même le début du palier en coïncidence.

Nous avons alors essayé d'améliorer les performances de l'appareil en utilisant des échelles de comptage à temps de résolution réglable (jusqu'à 20 μs) du type ELA (tiroir universel TU2). Nous espérons ainsi éviter le comptage des impulsions de dédoublement ; l'amélioration, quoique assez nette, les pentes des courbes diminuant beaucoup, n'était cependant pas encore satisfaisante.

Une modification ultérieure du TU2 portant le temps de résolution à 60 μs , n'a pas permis d'amélioration substantielle malgré des pertes de comptage sérieuses. En effet, des perturbations apparaissent plusieurs centaines de μs , après l'impulsion origine. Par ailleurs, les photomultiplicateurs du type utilisé engendrent des bruits thermoioniques de l'ordre de plusieurs centaines de coups par seconde en comptage "voie unique". Le rapport signal sur bruit (ou taux de comptage solution active sur taux de comptage bruit) est alors trop faible pour les échantillons d'activité inférieure à 1 μC par c/c et la mesure n'est plus qu'illusoire.

Aussi cet appareil a été abandonné au profit du CARBO-TRIMETRE LIE BELIN. De conception générale équivalente à celle de l'appareil TRICARB, il en diffère cependant par les points suivants :

Les photomultiplicateurs utilisés furent des EMI type 6097 A, puis de préférence des 20th Century type VMP 11/44 A sélectionnés pour un faible bruit de fond. Les préamplificateurs

de gain 2 (un atténuateur permettant le gain 0,2) sont suivis d'amplificateurs de gain 1500 (avec atténuateur décimal 0,1 ... 1). Ces amplificateurs dits 7 MHz ont en réalité une bande passante d'environ 5 MHz et sont particulièrement étudiés pour récupérer rapidement après une surcharge importante (quelques μ s).

La THT que l'on peut appliquer aux photomultiplicateurs peut varier d'une manière continue depuis 500 volts environ jusqu'à 2000 volts.

Le système de coïncidences a un temps de résolution de 0,3 μ s, ce qui n'entraîne pour les mesures habituelles ($\leq$ 2000 dps) qu'un taux de coïncidences fortuites absolument négligeable.

L'appareil de type commercial a été modifié suivant nos desiderata par l'adjonction d'une troisième échelle et d'un système de commutation permettant le comptage simultané de chaque voie séparément et des deux voies en coïncidence.

On obtient alors des paliers de plusieurs centaines de volts pour les émetteurs mous et moyens, d'environ deux cents volts pour les émetteurs durs, aussi bien en voie unique qu'en coïncidences. Il est à noter que l'étendue des paliers est fortement liée à la qualité des tubes photomultiplicateurs, certains paliers obtenus avec des 20th Century ayant atteint jusqu'à huit cents volts.

Les bruits de fond, de l'ordre d'une trentaine de coups par seconde, fluctuent peu avec le temps et restent toujours acceptables.

4-3. - Opérations et calculs

4-3-1 - Préparation des échantillons

La solution scintillante utilisée était celle préconisée par Kinard (21). D'une efficacité de scintillation moindre que le toluène, elle est parfaitement miscible avec presque toutes les solutions aqueuses. Elle est constituée de xylène, jouant le rôle de solvant du scintillateur, de 1-4 dioxane destiné à augmenter la miscibilité des solutions aqueuses, d'éthanol destiné à abaisser le point de congélation du mélange, le dioxane se solidifiant à 11° C ; (les proportions sont 5/13 de xylène, 5/13 de dioxane et 3/13 d'éthanol). La perte d'efficacité due à l'introduction de la phase aqueuse dans la phase organique est compensée par l'adjonction de naphthalène à raison de 80 g par litre (14).

Le soluté scintillant est du PPO (2,5 diphényloxazole) tandis que le scintillateur secondaire destiné à adapter la longueur d'onde de la lumière émise à la sensibilité maximum de la cathode du photomultiplicateur est du α NPO (α naphtylphényloxazole).

Les flacons échantillons normaux sont en verre à faible teneur en potassium (pour éviter l'émission β^- naturelle de ^{40}K). Ils sont remplis d'environ $0,2 \text{ cm}^3$ de solution active. D'autres flacons de plus grand volume permettent l'introduction de 1 cm^3 de solution active dans 60 cm^3 de solution scintillante. Ils sont destinés aux échantillons d'activité spécifique faible.

Les flacons sont remplis à l'avance de solution scintillante et conservés dans un réfrigérateur. Ils peuvent servir à la détermination du bruit de fond avant l'introduction de la solution active.

La mesure des volumes de solution active est effectuée au moyen de pipettes de précision. L'erreur commise sur le volume est d'environ 1 %.

4-3-2 - Méthode pratique de mesure

L'appareil étant en fonctionnement depuis plusieurs heures (pour obtenir en particulier la température adéquate dans le meuble frigorifique), on introduit le flacon échantillon à mesurer dans le puits de mesure. Le seuil des discriminateurs est fixé au minimum admissible (3 volts environ) pour supprimer le bruit de fond lorsque la THT n'est pas appliquée (bruit de l'électronique).

Des comptages d'une minute sont effectués en gain maximum des amplificateurs pour des THT variant de 900 à 1700 volts environ.

On peut alors tracer une courbe donnant le taux de comptage en fonction de la THT appliquée. Cette courbe présente un plateau pour des THT variant entre V et $V + \Delta V$. On applique alors aux tubes photomultiplicateurs, une THT comprise entre V et $V + \Delta V$ ($V + \frac{\Delta V}{2}$) par exemple.

Ces conditions gain maximum, THT comprise entre V et $V + \Delta V$ seront les conditions de mesure de l'échantillon considéré.

On détermine alors les taux de comptage T_1 , T_2 et T_{12} sur chacune des deux voies et en coïncidences. La durée du comptage est de dix minutes environ afin d'obtenir une statistique satisfaisante.

Puis l'échantillon est remplacé par un flacon "bruit de fond" qui est compté pendant la même durée. Les taux de comptage obtenus sont retranchés des taux précédents. On a alors les valeurs corrigées du bruit de fond. Soient T'_1 , T'_2 et T'_{12} ces valeurs.

Les deux valeurs T'_1 et T'_2 doivent être très voisines, comme nous l'avons vu plus haut. On utilise alors leur valeur moyenne T . Le rapport $\frac{T}{T_{12}} = f$ permet alors la détermination de R_c , par l'utilisation de la courbe de rendement de

l'élément mesuré. L'activité de l'échantillon est alors :

$$A_0 = \frac{T'_{12}}{R_c}$$

Des feuilles de mesure permettent la réalisation rapide de ces diverses opérations.

4-3-3 - Conditions pratiques d'emploi de la méthode

En dehors des limitations évidentes, telles que la nonmiscibilité, la précipitation, ou un "quenching" exagéré dû à une décomposition de la solution scintillante ou une coloration trop accusée de la solution active, il existe des limitations d'emploi dont certaines ont déjà été évoquées plus haut.

A - Effet de paroi

La détermination de la courbe de rendement est basée sur l'utilisation du spectre d'énergie d'émission. Or par suite des dimensions finies du flacon échantillon devant le parcours des particules β , d'énergie élevée, dans le scintillateur, la détermination de la courbe de rendement devrait en toute rigueur être basée sur l'utilisation du spectre d'énergie absorbée dans le scintillateur et non du spectre d'émission.

Ces spectres sont pratiquement confondus dans le cas d'émetteurs mous, et très voisins dans le cas d'émetteurs moyens (d'énergie maximum égale à quelques centaines de keV).

Prenons par exemple les particules d'énergie 100 keV. La courbe parcours-énergie due à FLAMMERSFELD, GLENDENIN, BLEULER attribue à ces particules un parcours de 13 mg/cm², ce qui correspond, pour nos flacons, à environ 1/100 du rayon.

Considérons alors le volume de scintillateur dont tous les points sont situés à moins de 0,013 cm environ des parois. Ce volume est environ 3/100 du volume total du scintillateur.

1,5 % des particules d'énergie supérieure à 100 keV perdront donc approximativement une énergie inférieure ou égale à 100 keV dans ce volume proche des parois (en effet, la moitié des particules en moyenne sera émise vers le centre du flacon).

Nous pouvons donc admettre la confusion des spectres d'émission et d'absorption au moins jusqu'à 100 keV. Pour les émetteurs mous (jusque vers 300 keV), la valeur de l'énergie limite $e/2$ sera petite devant 100 keV, étant bien entendu que la valeur de f reste inférieure à 2 ou 3. Toutes les particules d'énergie égale ou supérieure à 100 keV seront pratiquement comptées. On pourra donc facilement confondre les spectres pour l'établissement de la courbe de rendement. Pour les émetteurs moyens, $e/2$ ne sera petit devant 100 keV que si la valeur de f est limitée.

En moyenne, il faudra avoir $f \leq 1,4$. Enfin, pour les émetteurs durs, les spectres ne pourront être confondus que si f a des valeurs très voisines de l'unité : $f \leq 1,1$.

La mesure ne sera donc valable que si f remplit les conditions ci-dessus.

Cependant, il est à noter que la méthode pourra être étendue par l'utilisation de flacons plus grands, le spectre d'énergie absorbée étant d'autant plus proche du spectre d'émission que le volume soumis à l'effet de paroi (écorce d'épaisseur constante) sera plus petit devant le volume total.

B - Adsorption

Les éléments en solution "sans entraîneur" risquent, dans certaines conditions, d'être adsorbés, ce qui rend alors toute mesure illusoire. On pourra cependant parfois y remédier par l'adjonction de quantités pondérables de sels d'isotopes stables.

C - Phosphorescence

Certaines solutions actives présentent un phénomène de phosphorescence important. Il est alors nécessaire d'attendre la disparition de ce phénomène pour pouvoir procéder à la mesure.

D - Niveau de l'activité

Si le rapport signal sur bruit est faible en voie unique la mesure est peu précise. Une variante de la méthode de "l'étalon interne" peut être alors utilisée avec profit. Elle consiste à ajouter dans le flacon échantillon des traces impondérables de l'élément considéré ayant une forte activité spécifique. Le "quenching" n'est pas modifié par cette addition impondérable et par conséquent, le rendement ne l'est pas non plus. Le rapport signal sur bruit est alors convenable. Le rendement est alors déterminé et appliqué au taux de comptage "coïncidence" obtenu avant l'addition des traces d'élément. Le rapport signal sur bruit en coïncidence est toujours convenable, le bruit ne dépassant jamais 3 à 4 dps en coïncidence. La mesure retrouvera alors une précision satisfaisante. On peut noter que si les traces provenaient d'une solution étalon, la mesure permet en même temps l'évaluation du volume de ces traces.

- C H A P I T R E V -

=====

R E S U L T A T S

-1. - Généralités -

La méthode a été appliquée à divers éléments ^3H , ^{14}C , ^{60}Co , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{95}Zr , et les résultats obtenus ont été comparés à ceux provenant d'autres méthodes de mesure. On a parfois disposé d'échantillons étalons ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl ou de solutions étalonnées par les services du C.E.A.

La comparaison est immédiate pour les premiers. Pour les seconds, il faut tenir compte de l'erreur commise sur le volume de solution utilisée.

Lorsqu'on ne disposait pas de solutions étalons, la mesure de comparaison a été effectuée au moyen d'un compteur 4π proportionnel à circulation de gaz et au moyen d'un ensemble détecteur à coïncidences ($4\pi\beta, \gamma$) pour les émetteurs dont l'émission d'une particule beta est suivie de celle d'un photon en coïncidence (^{60}Co , ^{198}Au en particulier).

Nous étudierons la méthode de comparaison pour chacun des éléments et comparerons les valeurs obtenues dans chaque cas.

-2. - Mesure des divers éléments en "échantillons étalons" -

Bien que paraissant à priori réunir les conditions les plus favorables, car elle permet d'éliminer toutes les erreurs dues à la confection de l'échantillon, cette mesure sera entachée d'une erreur due à l'évaluation du bruit de fond qui se fait obligatoirement à l'aide d'un autre échantillon du scintillateur que celui mélangé à la solution étalon.

Les divers échantillons utilisés ont par ailleurs des activités "détectées" assez faibles en regard du bruit de fond (rapport signal sur bruit de l'ordre de 10 à 20). une fluctuation du bruit peut introduire alors une variation de l'ordre de 1 % sur la valeur du comptage en simple canal alors que cette variation est insensible en coïncidence; l'erreur sur le facteur f sera donc également de 1 %.

Compte tenu de la pente de la courbe de rendement, il peut en résulter dans certains cas (rendements assez élevés) une erreur supplémentaire de l'ordre de 2 % s'ajoutant à l'erreur de 1 % facilement admissible pour le tracé de la courbe de rendement.

5-2-1 - Mesure du tritium ^3H période 12 ans 26, énergie maximum 18 keV

Le tracé du spectre différentiel de l'émission bêta du tritium ne peut être effectué par la méthode graphique de MARSHALL. Il a donc été calculé par points en utilisant les tables du NBS (25).

Ces tables donnent généralement la valeur de $p^2F(Z, W)$ en fonction de p (cf. les notations du chapitre IV, par. 4-1-1). Dans le cas du tritium, le nombre des points obtenus est trop restreint. On peut alors utiliser les tables donnant $F_N(Z, W)$ en fonction de

$$y = \frac{2Z}{137} \frac{W}{P}$$

$F_N(Z, W)$ étant pratiquement égal à $kF(Z, W)$ lorsque Z est égal à 2 et W faible (cas du tritium, Z étant le numéro du noyau produit). Tous les points désirés peuvent être alors obtenus (voir tableau exemple ci-après).

Les tracés du spectre intégral et de la courbe de rendement ne présentent aucune difficulté (cette dernière est très voisine de la courbe $Y = \frac{2}{5X-3}$).

Les résultats obtenus avec différents tubes photomultiplicateurs et à différentes dates sont ramenés à la date du 1/6/59 où l'activité étalon était égale à 90.300 ± 2.700 dpm.

Date	P.M utilisés	f	R _C	Activité	Activité au 1/6/59
6/6/61	20 th Century	1,82	31,5 %	67.300	75.600
6/2/62	E.M.I	1,75	34 %	67.000	78.000
5/3/62	20 th Century	1,89	30 %	66.600	77.800
4/4/62	20 th Century	1,755	35,5 %	66.700	78.400

La valeur moyenne des 4 résultats est donc 77.450, l'écart type est de 1.100. On pourra donc prendre :

$$A = 77.400 \pm 3.300 \text{ dpm}$$

Cette valeur est assez éloignée de celle indiquée pour l'échantillon. Les mesures effectuées dans des conditions assez différentes ayant donné des résultats assez voisins, il faut alors incriminer la méthode ou la valeur indiquée. On a donc essayé de recommencer avec un autre échantillon étalon. Les résultats

- TABLEAU EXEMPLE -

E (keV)	$(E_o - E)^2$	W	P	W/P	y	F (Z, W)	N (E)
0,5	320,41	1,000196	0,0198	50,57	4,640	4,68	29,70
0,1	306,25	1,000980	0,0442	22,626	2,0754	2,38	32,28
1	289	1,0019	0,0625	16,0313	1,4705	1,908	34,53
2	256	1,0038	0,0873	11,4983	1,0547	1,615	36,23
3	225	1,0059	0,1083	9,2877	0,8519	1,485	36,40
4	196	1,0078	0,1252	8,0496	0,7383	1,415	35,00
5	169	1,009	0,1402	7,2024	0,6616	1,369	32,75
6	144	1,0117	0,1535	6,5910	0,6046	1,332	29,79
7	121	1,0137	0,1661	6,1029	0,5698	1,306	26,61
8	100	1,0156	0,1776	5,7187	0,5246	1,285	23,10
9	81	1,0176	0,1884	5,4012	0,4954	1,271	19,74
10	64	1,0195	0,1988	5,1286	0,4704	1,254	16,27
11	49	1,0215	0,2085	4,8992	0,4494	1,242	12,96
12	36	1,0235	0,2181	4,6928	0,4305	1,230	9,88
13	25	1,0254	0,2268	4,5211	0,4147	1,221	7,10
14	16	1,0274	0,2357	4,3589	0,3998	1,213	4,70
15	9	1,0293	0,2440	4,2186	0,3870	1,205	2,72
16	4	1,0313	0,2521	4,0908	0,3752	1,199	1,25
17	1	1,0332	0,2598	3,9769	0,3648	1,193	0,32
18	0	1,0352	0,2677	3,8670	0,3547	1,188	0

obtenus sont donnés ci-après :

Date	P.M	f	R _C	Activité	Activité au 1/2/62
4/4/62	20 th Century	1,675	36,5	53.000	56.400

Or l'activité étalon était donnée égale à 84.000 dpm au 1/2/62.

La valeur trouvée est encore plus éloignée que pour l'échantillon précédent.

En ce qui concerne le tritium, la méthode ne semble donc pas donner de résultats satisfaisants.

5-2-2 - Mesure du carbone 14 - ¹⁴C période 5570 ans, énergie maximum 155 keV

Le tracé du spectre différentiel est effectué au moyen de la méthode graphique.

La courbe de rendement est encore très voisine de la courbe $Y = \frac{2}{5X - 3}$.

L'échantillon étalon est donné d'activité égale à 28.000 ± 800 dpm. Les résultats obtenus aux différentes dates sont les suivants :

Date	P.M utilisés	f	R _C	Activité	Activité le 1/6/59
7/6/61	20 th Century	1,073	84 %	27.500	27.500
4/1/62	20 th Century	1,092	80,5 %	26.700	26.700
7/2/62	E.M.I	1,048	88 %	26.600	26.600
5/3/62	20 th Century	1,072	84 %	27.500	27.500
6/3/62	20 th Century	1,061	86,5 %	26.900	26.900

La valeur moyenne est 27.040.

L'écart type est 330.

On pourra prendre :

$$A = 27.000 \pm 1.000 \text{ dpm}$$

Cette valeur est en bon accord avec celle annoncée.

5-2-3 - Mesure du Chlore 36 - ^{36}Cl période 4.10^5 ans, énergie maximum 0,720 MeV

Le tracé du spectre est effectué par le calcul en raison de la détermination nécessaire du facteur de forme

$$C(E) = p^2 + 0,6q^2$$

(cf. par. 4-1-1) la transition étant doublement interdite.

La courbe de rendement est tracée à deux échelles différentes. Le facteur f restant très voisin de 1, il est en effet nécessaire de préciser la région comprise entre $f = 1$ et $f = 1,2$.

L'échantillon étalon est donné d'activité égale à 27.400 ± 800 dpm.

Les résultats obtenus sont les suivants :

Date	P.M utilisé	f	R_c	Activité
6/3/62	20 th Century	1,016	96 %	28.800
5/2/62	20 th Century	1,010	97,5 %	28.800
6/2/62	20 th Century	1,019	95,5 %	28.600
4/4/62	20 th Century	1,025	94 %	29.500

La valeur moyenne est alors 28.925 dpm, l'écart type 350.

On prendra

$$A = 28.900 \pm 1.000 \text{ dpm}$$

Cette valeur est en assez bon accord avec celle annoncée. Il est cependant à noter que celle-ci doit être trop faible car les taux de comptage "coïncidence" sont en moyenne de 27.500 dpm, soit déjà supérieurs à la valeur annoncée.

5-3. - Mesure des divers éléments en solution étalon -

Aux erreurs précédemment indiquées pour la détermination du rendement, s'ajoutent les erreurs de détermination de volume ou de poids. Elles sont plus souvent de l'ordre de 1 à 2 %. A titre de vérification, la mesure est le plus souvent conduite comme si l'activité de la solution était inconnue ; nous mentionnerons donc les résultats obtenus dans ce cas, dans le paragraphe suivant.

5-3-1 - Mesure du Zirconium 95 en équilibre avec le Niobium 95

^{95}Zr période 65 jours, énergie maximum β 0,396 MeV

^{95}Nb période 35 jours, énergie maximum β 0,158 MeV.

La mesure n'est conduite normalement que dans le cas de l'équilibre. Elle est néanmoins possible quel que soit l'état du mélange Zr + Nb si le mélange provient de Zr pur et si l'on connaît la date de séparation (Zr, Nb) de ce Zr pur. On est alors conduit à tracer une courbe de rendement valable seulement au moment de la mesure.

Dans le cas de l'équilibre, les spectres intégraux sont tracés et on les additionne, compte tenu des activités relatives. La courbe de rendement est tracée alors comme s'il s'agissait du spectre d'émission d'un seul élément.

On disposait d'une source étalon donnée pour $29,3 \mu\text{C/g}$ le 3/1/62 à 12 h 00, l'activité du Zr à cette date étant 47,5 % de l'activité totale.

On détermine alors l'activité du Zr à la date de la mesure, puis l'activité du mélange au moyen d'une courbe préétablie. On a ainsi une activité de 117.000 dpm pour 0,2 c/c le 18/4/62.

Trois sources sont préparées à l'aide d'une pipette de précision. Elles donnent les résultats suivants :

Source 1	$f = 1,155$	$R_C = 71,2$	Activité = 119.500 dpm
Source 2	$f = 1,132$	$R_C = 74,5$	Activité = 120.500 "
Source 3	$f = 1,136$	$R_C = 73,5$	Activité = 121.500 "

Ces résultats sont donc en excellent accord avec celui calculé ci-dessus à partir de l'étalonnage

5-4. - Mesure des éléments en solutions d'activités inconnues -

5-4-1 - Mesure des émetteurs beta purs

Pour mesurer ces éléments, on a utilisé un compteur 4π à circulation de méthane (compteur proportionnel 4π Tracerlab) à deux hémisphères coiffés de préamplificateurs, un amplificateur de gain 8.000 Tracerlab adapté au compteur, une alimentation THT 5.000 volts Inter technique et une échelle de comptage du type ELA.

Pour diminuer l'absorption des divers supports de source, un film de mylar (épaisseur de l'ordre de 1 mg/cm^2) fixé sur un cercle métallique et métallisé à l'aluminium, a été utilisé de préférence à l'aluminium en feuille mince. Une ouverture de deux centimètres et demi de diamètre est découpée à l'emporte pièce au centre du film de mylar. Cette ouverture est recouverte d'un film mince de formvar (obtenu selon les méthodes classiques sur

une plaque de verre) d'une épaisseur de quelques dizaines de microgrammes par cm^2 . Le support ainsi réalisé est métallisé à l'or (20 à 30 microgrammes par cm^2) sur les deux faces.

La source est constituée par une goutte de solution déposé sur le film de formvar après interposition d'un mouillant (cétavlon) et évaporée.

Des paliers de comptage de l'ordre de 800 volts sont obtenus sans difficultés, le temps de résolution de l'échelle de comptage étant toutefois fixé à 10 μs .

Pour déterminer les corrections d'absorption, les taux de comptage sont relevés séparément pour chaque hémisphère et pour l'ensemble du compteur. La formule de Mann et Seliger (10) permet la détermination du facteur d'absorption.

Le volume de la goutte n'est pas mesuré. En effet, pour éviter une erreur supplémentaire, le film de formvar est découpé, placé dans un flacon échantillon, traité par une goutte d'eau régale pour dissoudre l'or. On remplit ensuite le flacon avec 15 cc de scintillateur. Le film se dissout très facilement et ainsi toute l'activité de la source se retrouve dans le flacon destiné à la mesure au spectromètre. Les résultats ainsi obtenus restent cependant entachés d'une erreur due à l'auto absorption. Celle-ci, malgré l'utilisation de mouillant dans la confection des sources n'est pas négligeable pour les émetteurs d'énergie faible, tel que le ^{35}S par exemple.

Aucune autre méthode n'existant à notre connaissance pour éliminer l'auto absorption, nous tolérerons donc un écart plus important entre les valeurs obtenues au 4π et les valeurs obtenues en scintillation liquide, à condition toutefois bien entendu que ces dernières soient les plus élevées.

5-4-1-1 - Mesure du Phosphore ^{32}P période 14,3 jours
énergie maximum 1,7 MeV

Le spectre différentiel (spectre permis) est tracé graphiquement. Le spectre intégral et la courbe de rendement sont tracés sans difficulté.

On dispose d'une solution étalon à 37,85 $\mu\text{c/g}$ le 24/3/62 à 10 h 30. Des sources, réalisées par dépôt d'une goutte de solution évaporée, sont mesurées suivant la technique ci-dessus. Par suite de la nécessité de réaliser des sources de poids faible, l'activité de la solution étant assez importante, l'erreur relative sur les pesées atteint 4 à 5 %. Mais grâce à la vérification au 4π , cette erreur n'affecte pas d'une manière aussi importante la validité de la mesure.

Toutes les activités mesurées sont ramenées au 24/3/62 à 10 h 30.

La source n°1 d'activité trop importante, n'est pas utilisable.

Source n° 2

Date de mesure	Poids : 2,5 mg $\pm$ 0,1	Activité attendue 3510 dps
au 4 π : 5/4/62 à 15 h 30	Absorption : 4,1 %	Activité ramenée 3430 dps
Scint. liquide : 9/4/62 à 9 h 30	$f = 1,058 - R_c = 88,5 \%$	Activité ramenée 3560 dps

Source n° 3

Date de mesure	Poids : 1,9 mg $\pm$ 0,1	Activité attendue 2660 dps
au 4 π : 6/4/62 à 16 h 30	Absorption : 3,7 %	Activité ramenée 2680 dps
Scint. Liquide : 9/4/62 à 10 h	$f = 1,058 - R_c = 88,5 \%$	Activité ramenée 2750 dps

Les résultats sont en excellent accord, l'écart maximum étant d'environ 4 %. Il est à noter que la mesure du ^{32}P au scintillateur liquide ne peut s'effectuer qu'environ 48 heures après la préparation de l'échantillon par suite de la phosphorescence de la solution.

5-4-1-2 - Mesure du Strontium 90 en équilibre avec l'Yttrium 90
 $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$
 période apparente : 28,4 années
 énergie maximum ^{90}Sr 0,54 MeV
 ^{90}Y 2,26 MeV

Les spectres différentiels sont tracés graphiquement. Les spectres intégraux sont sommés pour obtenir le spectre intégral du mélange à l'équilibre. La courbe de rendement est calculée comme s'il s'agissait d'un élément unique.

Les sources sont mesurées comme pour le phosphore.

Les dates de mesure sont voisines. Aucune correction n'est effectuée pour décroissance. On dispose d'une solution étalon à 38,35 $\mu\text{C/g}$ le 21/3/62.

Source n° 1

	Poids de la source : 2,5 mg $\pm$ 0,1	Activité attendue 3550 dps
Mesure 4 π	Facteur d'absorption : 7 %	Activité mesurée 3510 dps
Scintillateur liquide	f = 1,09 - R _C = 83 %	Activité mesurée 3560 dps

Source n° 2

	Poids de la source : 2 mg $\pm$ 0,1	Activité attendue 2840 dps
Mesure 4 π	Facteur d'absorption : 5,5 %	Activité mesurée 2770 dps
Mesure scintillateur liquide	f = 1,105 - R _C = 81 %	Activité mesurée 2820 dps

Les résultats sont encore en excellent accord.

5-4-2 - Mesure des émetteurs beta-gamma

Outre la mesure au 4 π utilisée dans les cas défavorables, ¹³⁷Cs par exemple, on a utilisé pour le ⁶⁰Co et l'¹⁹⁸Au, la méthode des coïncidences beta-gamma.

A cette effet, un montage a été réalisé comprenant :

- un ensemble de détection beta constitué par :
 - un compteur 4 π proportionnel à circulation de méthane suivi d'un préamplificateur et d'un amplificateur SAIP à temps mort fixé à 6 μ s.
- un ensemble de détection gamma constitué par une sonde à scintillation à cristal de NaI (type DCSI LIE BELIN, PM 53 AVP, préamplificateur 2 MC), un amplificateur sélecteur à un canal Intertechnique.
- un ensemble de coïncidences constitué par :
 - une ligne à retard continument variable de 0 à 11 μ s AD - YU
 - un appareil de coïncidences DYNATRON.
- un ensemble de comptage à 3 échelles type ELA. Les trois échelles sont commandées par la même horloge.

Le compteur 4π est placé sur la sonde à scintillation. Le fond du compteur a été aminci pour augmenter l'efficacité de la détection gamma. Le support de source est réalisé en aluminium mince percé d'une ouverture de 2 cm de diamètre, elle-même recouverte d'un film mince suivant la technique indiquée plus haut.

Les sources également déposées sans mesure de volume et évaporées subissent le traitement précédent après mesure en coïncidences beta-gamma.

L'utilisation du compteur 4π permet de négliger la plupart des corrections inhérentes à la méthode des coïncidences beta-gamma (13).

En outre, la correction d'auto absorption est maintenant évitée. Cette technique a été utilisée en particulier pour le ^{60}Co .

Pour l'or 198, ¹⁹⁸Au, il est pratiquement impossible de réaliser des sources du type goutte évaporée. En effet, les solutions d'or dans l'eau régale détruisent les supports minces.

Aussi, une technique spéciale est-elle utilisée.

De l'or battu est découpé en disques de faibles diamètre (quelques mm). Ces disques sont irradiés à la pile. La réaction nucléaire produite par les neutrons donne naissance à de l'or 198.

Le disque d'or irradié est placé au centre d'un support sur lequel il adhère sans difficulté.

La source ainsi constituée est mesurée en coïncidences beta-gamma, puis mise en solution suivant la technique habituelle.

5-4-2-1 - Mesure du ^{60}Co période 5 ans 24 énergie maximum beta:
 énergie gamma { 1,17 MeV 0,312 MeV
 1,33 MeV

Le tracé du spectre est effectué graphiquement (spectre permis). La courbe de rendement est tracée sans difficulté.

Trois sources ont été réalisées pour le comptage en coïncidences. Les métallisations à l'or effectuées sur le support sont respectivement 20 μg sur chaque face, 30 μg sur chaque face et 50 μg sur une face, 30 μg sur l'autre, de façon à varier les coefficients d'absorption et les rendements.

Les résultats obtenus sont les suivants :

Les dates de mesure sont assez voisines (~ 10 jours) pour négliger la décroissance entre deux mesures.

Source 20/20 Mesure au 4 π	Facteur d'absorption 13 %	Activité 117.700 dpm
Mesure en coïncidences	rendement 86,6 %	Activité 123.700 dpm
Mesure en scin- tillation liquide	$f = 1,17 - R_C = 70 \%$	Activité 124.200 dpm

Source 30/30 Mesure en 4 π	Facteur d'absorption 17,6 %	Activité 284.400 dpm
Mesure en coïncidences	rendement 84 %	Activité 301.200 dpm
Mesure en scin- tillation liquide	f = 1,22 - R _C = 65 %	Activité 299.600 dpm

Source 50/50 Mesure en 4 π	Facteur d'absorption 20 %	Activité 222.000 dpm
Mesure en coïncidences	rendement 81,2 %	Activité 239.100 dpm
Mesure en scin- tillation liquide	f = 1,25 - R _C = 61 %	Activité 235.000 dpm

Les mesures en coïncidences et en scintillation liquide sont chaque fois en excellent accord.

A noter que l'auto absorption est assez importante, de l'ordre de 5 % à 7 %.

5-4-2-2 - Mesure de l'Or 198 - ^{198}Au période 2,7 jours

énergie maximum beta	0,960 MeV
énergie gamma	0,410 MeV

Le tracé du spectre est effectué graphiquement (spectre interdit du premier ordre). La courbe de rendement est tracée sans difficulté.

Quatre sources ont été réalisées pour le comptage en coïncidence. La métallisation à l'Or était de 20 μg sur chaque face.

Les résultats ramenés à la même date origine, sont les suivants :

Source n° 1

Mesure en coïncidence	Rendement : 91,6 %	Activité 44.700 dpm
Mesure en scintillation liquide	$f = 1,065 - R_C = 85 \%$	Activité 44.700 dpm

Source n° 2

Mesure en coïncidence	Rendement : 95,4 %	Activité 43.900 dpm
Mesure en scintillation liquide	$f = 1,051 - R_C = 88 \%$	Activité 43.800 dpm

Source n° 3

Mesure en coïncidence	Rendement : 89,3 %	Activité 37.000 dpm
Mesure en scintillation liquide	$f = 1,078 - R_C = 83,5 \%$	Activité 39.700 dpm

Source n° 4

Mesure en coïncidence	Rendement : 91 %	Activité 44.400 dpm
Mesure en scintillation liquide	$f = 1,102 - R_C = 79 \%$	Activité 43.800 dpm

Mise à part la Source n° 3, où l'écart atteint 7,3 %, les autres résultats sont tous en excellent accord.

- C O N C L U S I O N -

La méthode de mesure développée ci-dessus est donc satisfaisante, hors le cas du tritium et vraisemblablement des émetteurs aussi mous (tel que le Plutonium 241 par exemple).

Dans le cas des émetteurs très mous, le nombre de photons créés dans le scintillateur est trop faible pour que les hypothèses émises sur les distributions soient vérifiées avec une approximation suffisante. Toute amélioration dans le rendement doit donc conduire à un résultat plus satisfaisant.

Il est certain que l'utilisation de flacons en quartz à faces planes et parallèles, couplés optiquement aux tubes photomultiplicateurs, une sélection plus poussée des divers solvants et scintillateurs ainsi que des tubes photomultiplicateurs, auraient conduit à des rendements nettement plus élevés et à un rapport signal sur bruit nettement meilleur. On peut donc supposer que la précision en eut été améliorée et la validité de la mesure étendue aux émetteurs très mous.

Il faut cependant signaler que l'on s'est attaché à développer une méthode de mise en oeuvre rapide et ne demandant qu'un personnel peu spécialisé.

La méthode sera donc applicable aux émetteurs d'énergie maximum supérieure à une centaine de keV. La précision attendue sera de l'ordre de 3 à 5 % suivant les émetteurs.

- BIBLIOGRAPHIE -

- 1 - HALLIDAY Introduction à la Physique Nucléaire (DUNOD, éditeur - PARIS) Chapitre VI.
- 2 - MOUSSA Cours de Physique Nucléaire (non publié).
- 3 - PAUL et Interaction of electrons with matter (Beta and
STEINWEDEL Gamma Ray Spectroscopy KAI SIEGBAHN, éditeur) Chapitre I.
- 4 - GANDY Préparation et étalonnage des sources radioactives de référence (non publié).
- 5 - GRINBERG et Mesure absolue des radioéléments émetteurs β
LE GALLIC par la méthode de l'angle solide défini (J. Ph et Rad - Supplément au n° 3 Tome 17 - mars 1956 Page 35 A).
- 6 - GLEASON, TAYLOR et TABERN Absolute Beta Counting at defined Geometries
Nucleonics - mai 1951 - page 12.
- 7 - SELIGER et The absolute standardization by 4 π counting
CAVALLO J1 of Research NBS 47 1951 - page 41.
- 8 - PATE et YAFFE Disintegration rate determination by 4 π counting
Part I Can. J1 of Chem. 33 - 1955 - page 610.
- 9 - id Part II - page 929.
- 10 - MANN et Refinements in radioactive standardization
SELIGER by 4 π beta counting - J1 of Res. NBS 50-1953
page 197.
- 11 - GRINBERG et Quelques remarques sur la mesure absolue des
LE GALLIC émetteurs au compteur 4 π
Rapport CEA N° 979 - 1958.
- 12 - PUMAN Absolute measurements of the activity of β
emitters. Brit. J1 of radiology XXIII 1950 -
page 46.
- 13 - CAMPION The standardization of radioisotopes by the β -
 γ coincidence methode using high efficiency
detectors-Int. J1 of Ap. Rad. and Isotopes
4, 1959 - page 232.

- 14 - KALLMANN et FURST The basic processes occurring in the liquid scintillator (Liquid Scintillation Counting - BELL et HAYES - PERGAMON Press 1958) - Part I - page 3 et sq.
- 15 - SWANK Limits of sensitivity of Liquid Scintillation Counters (Liquid Scintillation Counting - BELL et HAYES - PERGAMON Press 1958) - Part I - page 23.
- 16 - PACKARD Instruments for internal sample liquid scintillation counting (Liquid Scintillation Counting - BELL et HAYES - PERGAMON Press 1958) - Part II - page 50.
- 17 - HORROCKS et STUDIER Determination of the absolute disintegration rates of low energy beta emitters in a liquid scintillation spectrometer. Analytical Chemistry - Vol. 33 n° 4 - avril 1961 - page 615.
- 18 - COCHE et LAUSTRIAT Influence de la température sur les photomultiplicateurs et les scintillateurs liquides. J1 de Phys. et Rad. - Tome 19 - décembre 1958 - page 927.
- 19 - COROMPT et BOUCHEZ Mesure absolue β par spectrométrie 4π à scintillation. J1 de Phys. et Rad. - Tome 21 - mai 1960 - page 483.
- 20 - LIE BELIN Carbotrimètre - Notice descriptive et d'emploi.
- 21 - KINARD Liquid scintillator for the analysis of tritium in water. Rev. Sci. Instruments 28 - 1957 - page 293.
- 22 - MARSHALL How to figure shapes of beta ray spectra. Nucleonics août 1955 - page 34.
- 23 - ROSE The theory of allowed beta decay (Beta and gamma ray spectroscopy - KAI SIEGBAHN, éditeur) Chapitre IX - page 273.
- 24 - KONOPINSKI The theory of forbidden beta decay (Beta and gamma ray spectroscopy - KAI SIEGBAHN, éditeur) Chapitre X - page 292.
- 25 - Tables for the Analysis of Beta Spectra Applied Math Series N° 13 (NBS WASHINGTON DC 1952).

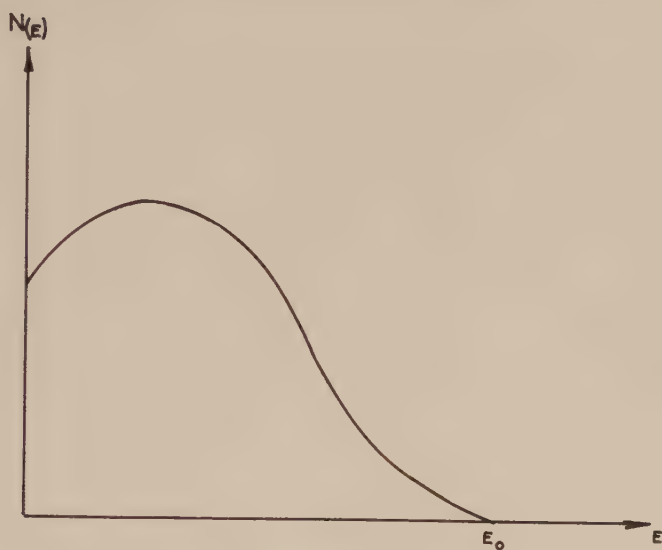


Figure 1 — Spectre bêta "pur"

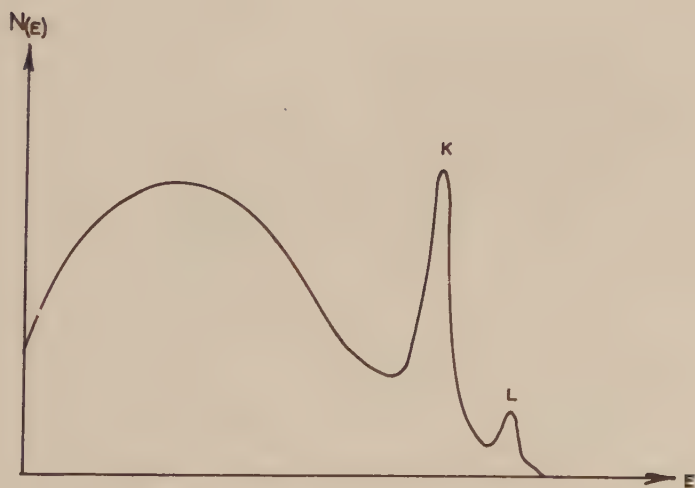


Figure 2 — Spectre bêta avec raies de conversion

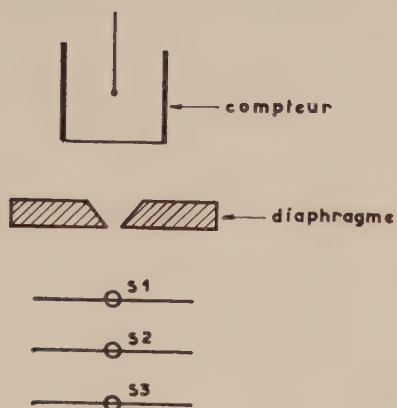


Figure 3 — Angle solide défini

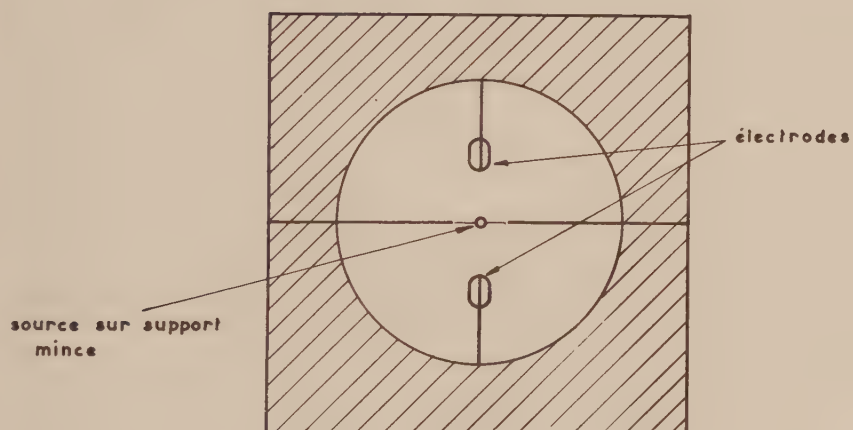


Figure 4 — Schéma du compteur 4 π

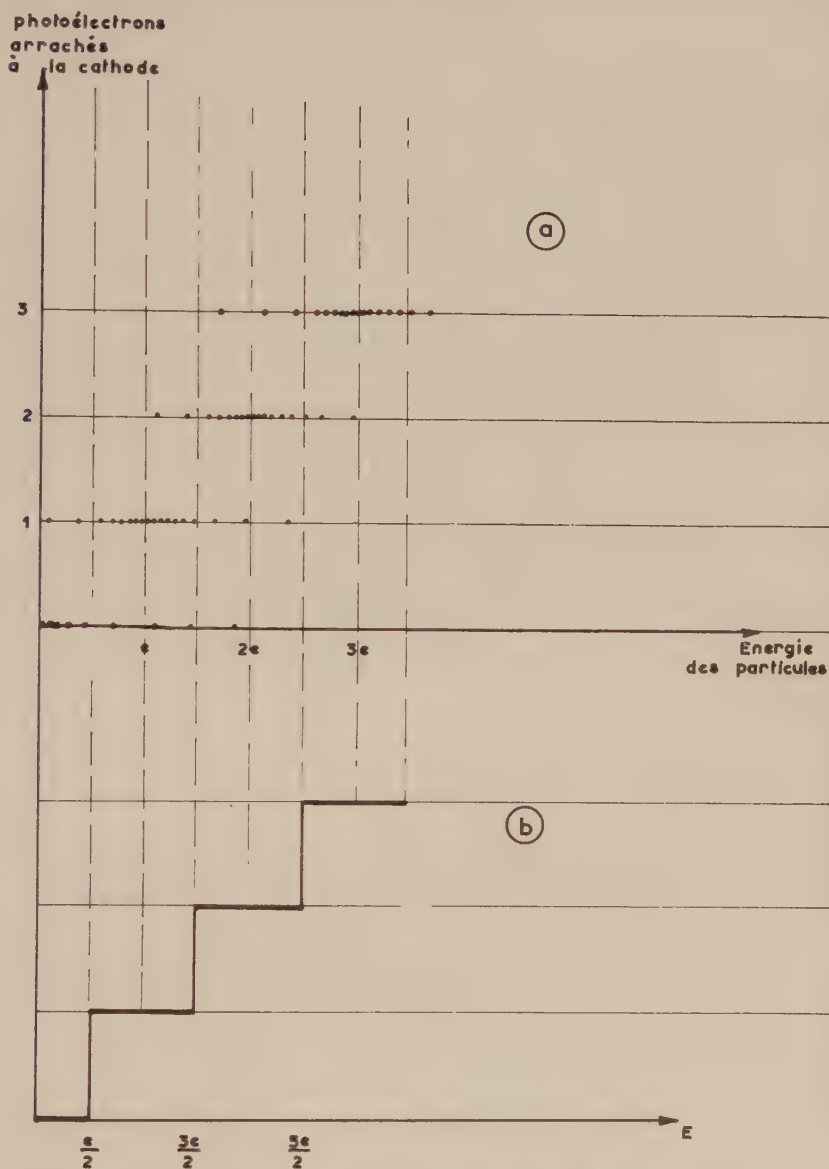


Figure 5- (a) Distribution réelle (b) Distribution adoptée

du nombre des photoélectrons produits pour un grand nombre de désintégrations

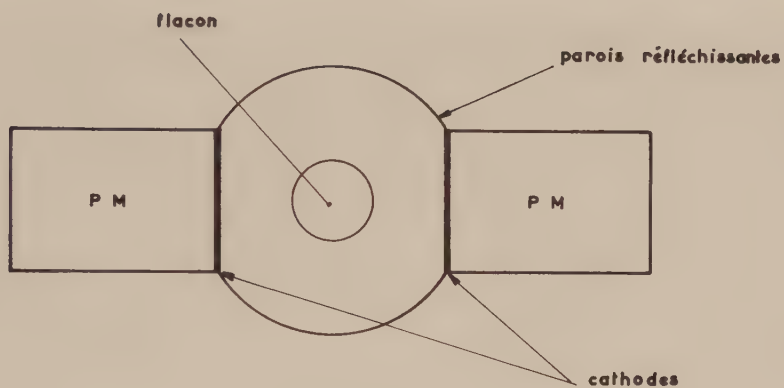


Figure 6 — Schéma de la disposition géométrique du spectromètre

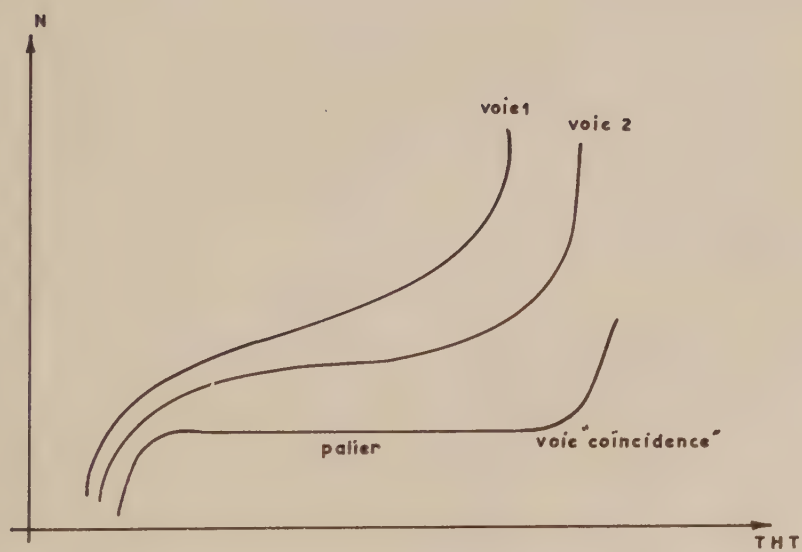
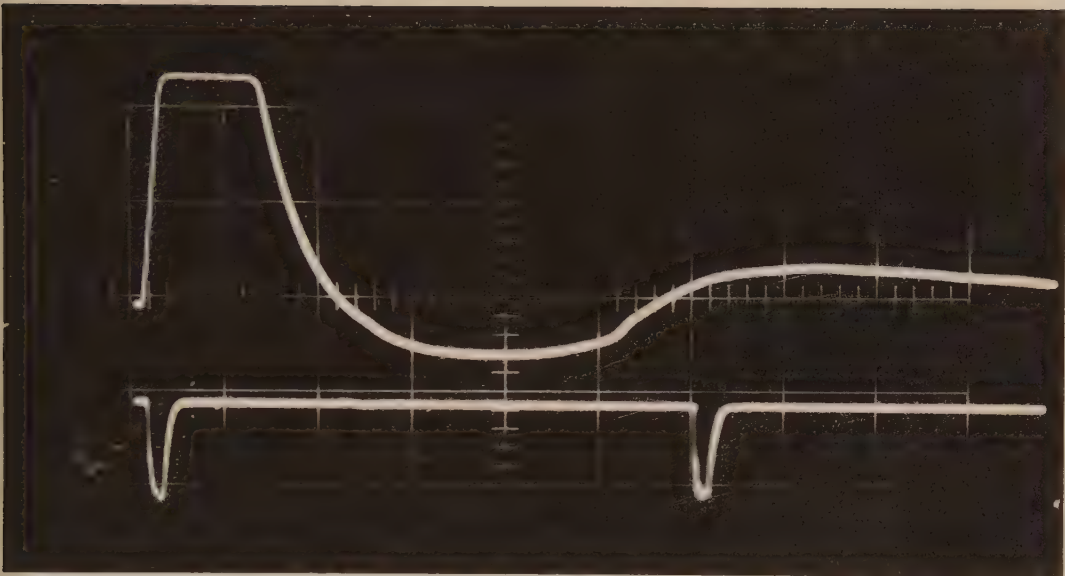


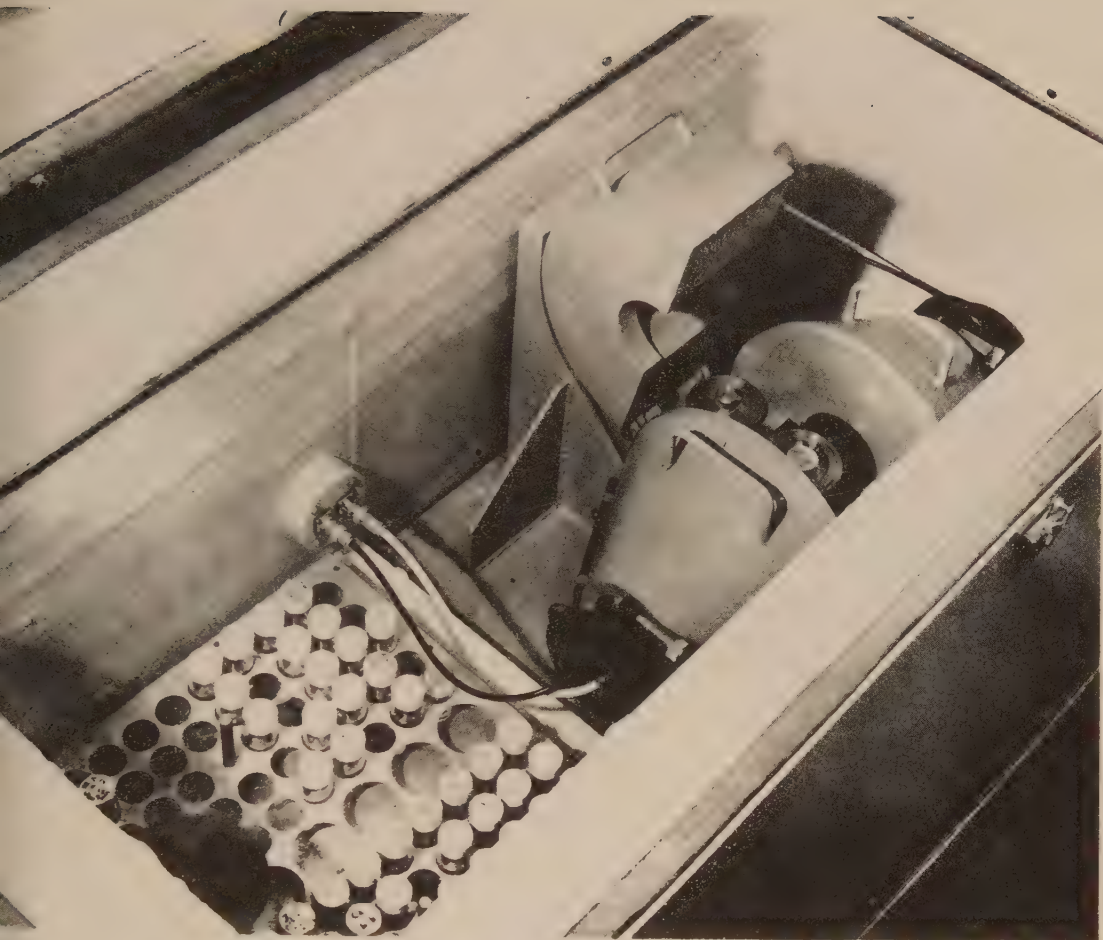
Figure 7 —



ECHELLE VERTICALE : A : 20 V/cm (amplificateur)
B : 5 V/cm (discriminateur)

ECHELLE HORIZONTALE : 2 μ s/cm

IMPULSION D'ENTREE : 0,5 V (saturante)
largeur : 5 μ s
temps de montée : 0,1 μ s



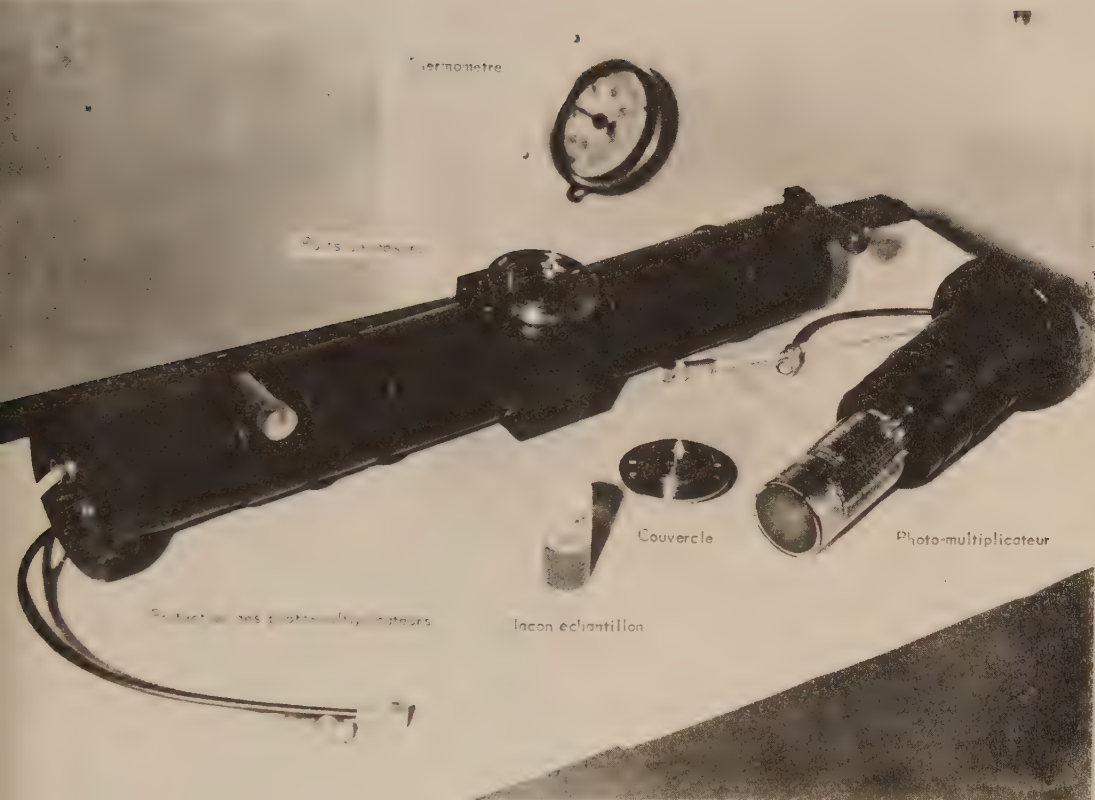
Flacons échantillons

Château de Plomb

Puits de mesure

CARBOTRIMETRE

Armoire frigorifique (intérieur)



CARBOTRIMETRE

Détail de l'ensemble de détection



← 1 - Amplificateur

← 2 - Echelle de coïncidences

← Voie 1 Echelles

← 3 - Voie 2

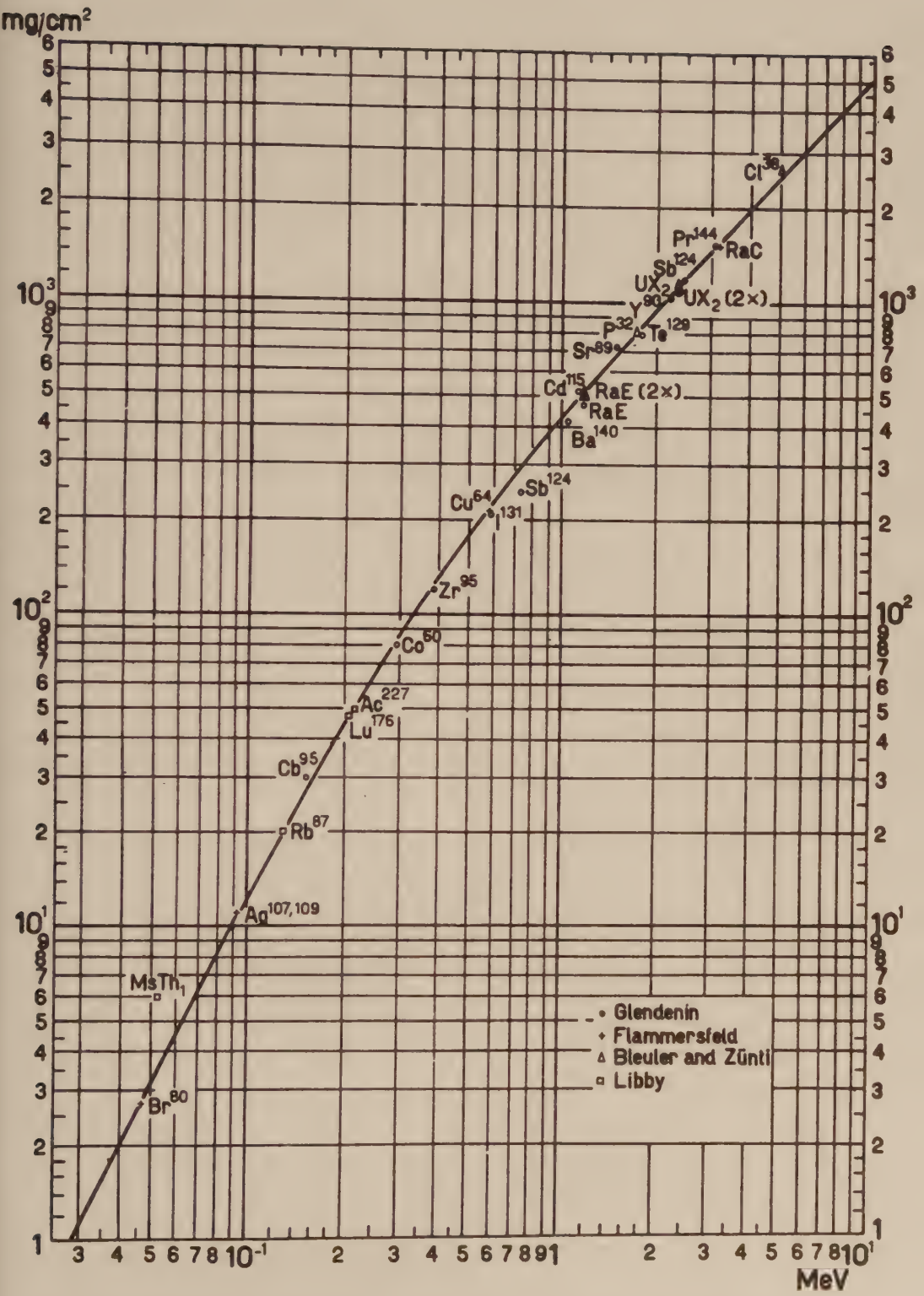
← Sélecteur

← 4 - Alimentation T.H.T.

← 5-6 - Alimentations diverses

CARBOTRIMETRE

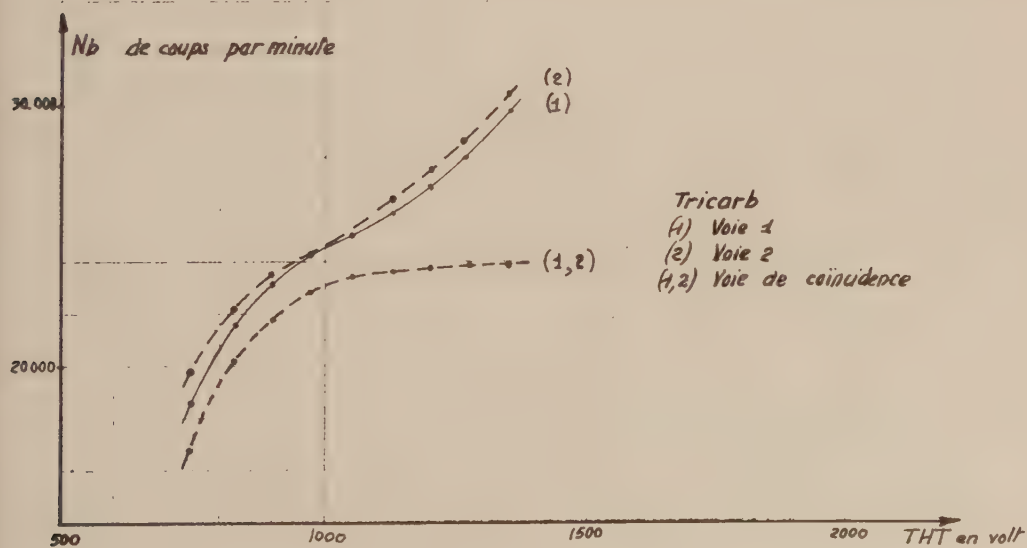
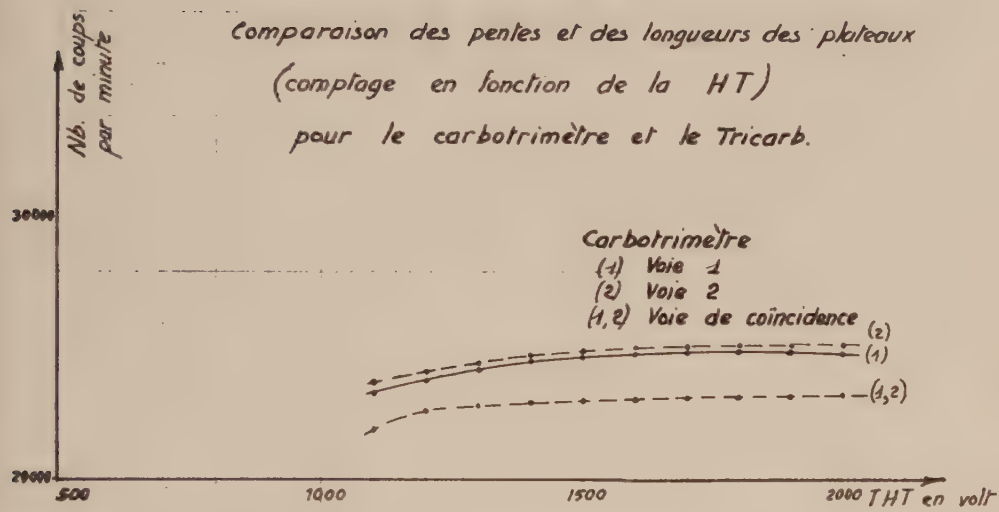
Armoire électronique



Parcours maximum des particules β émises par certains émetteurs en fonction de leur énergie maximum (d'après Flammersfeld).

ETALON de CARBONE 14

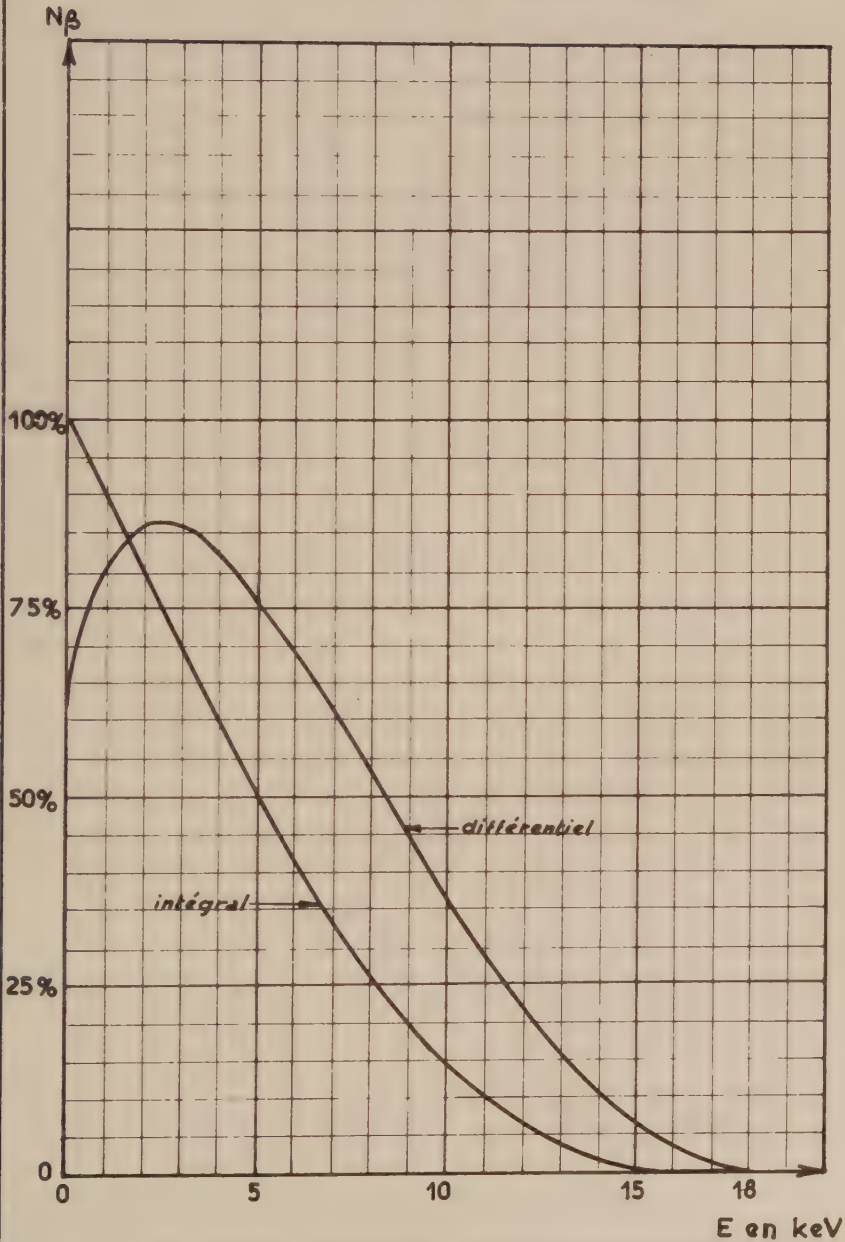
Comparaison des pentes et des longueurs des plateaux
(comptage en fonction de la HT)
pour le carbotrimètre et le Tricarb.





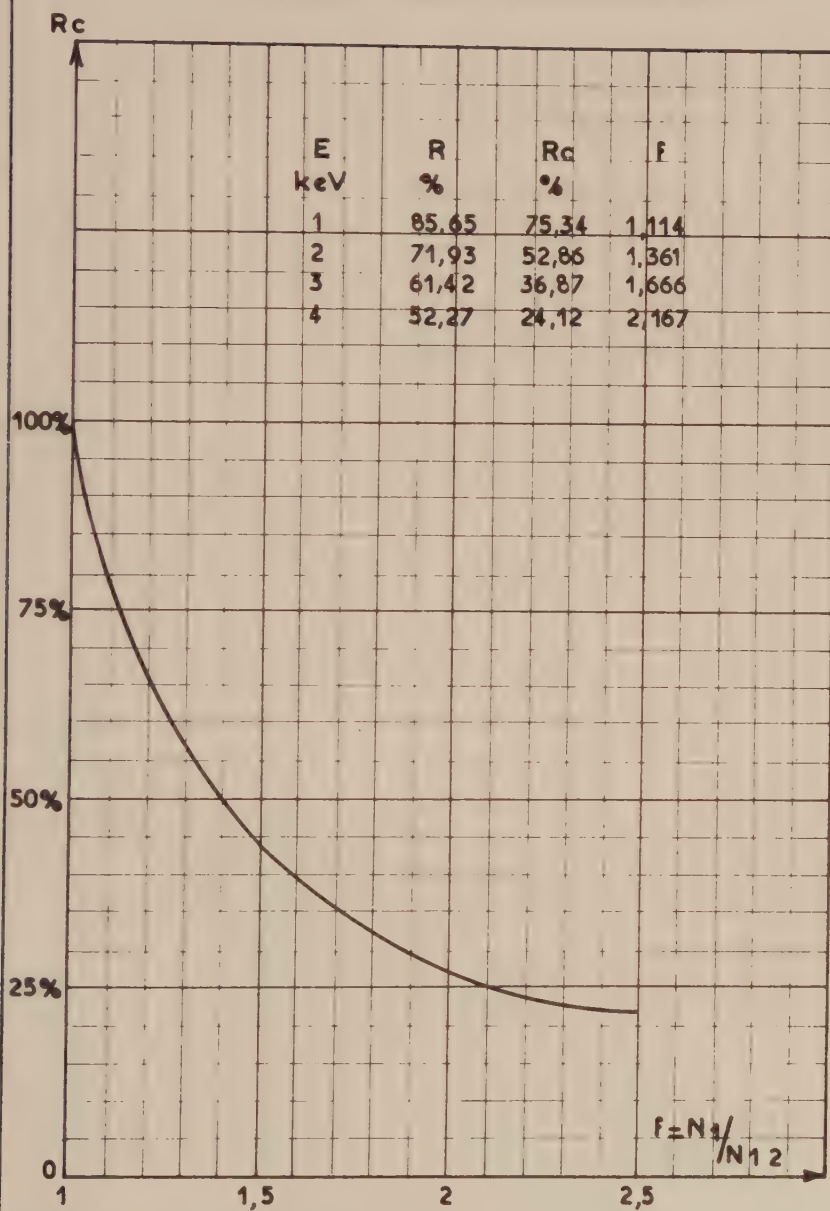
$E_{\text{max}} = 18 \text{ keV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL



${}^3_1\text{H}$ E. max = 18 keV

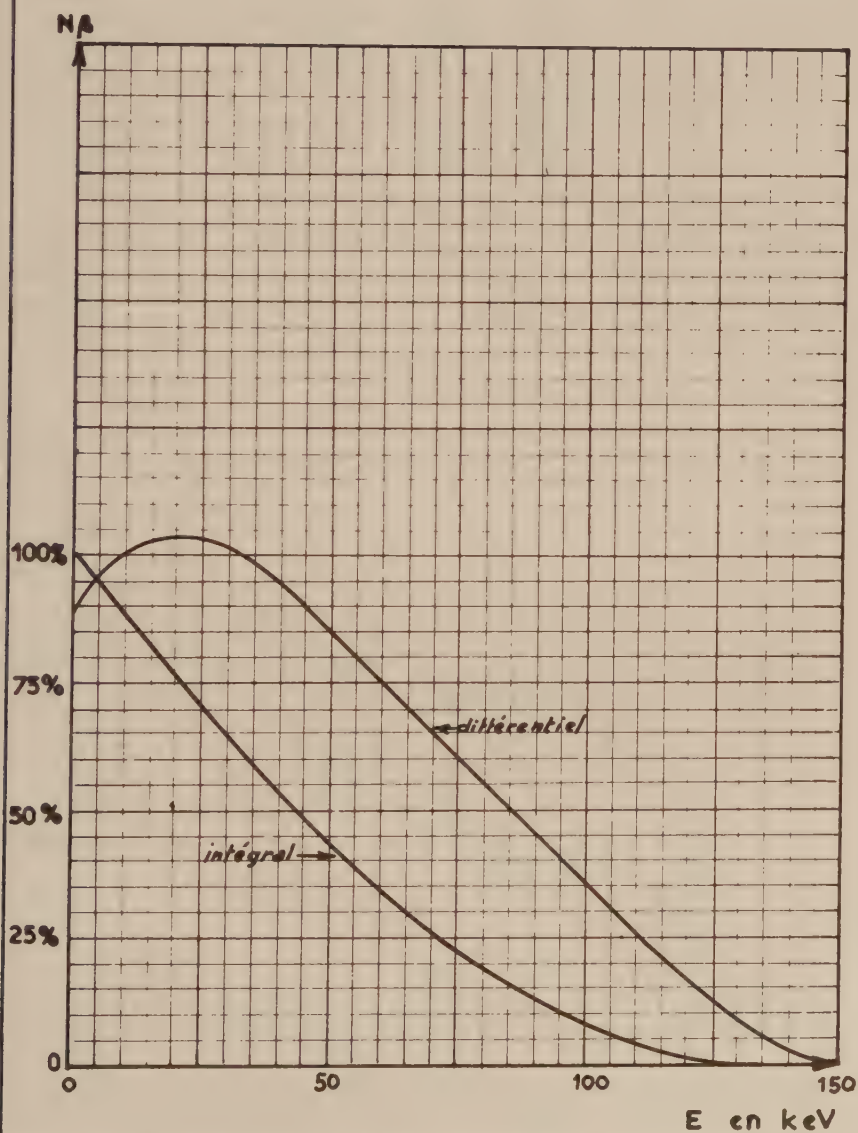
COURBE DE RENDEMENT



$^{14}_6\text{C}$

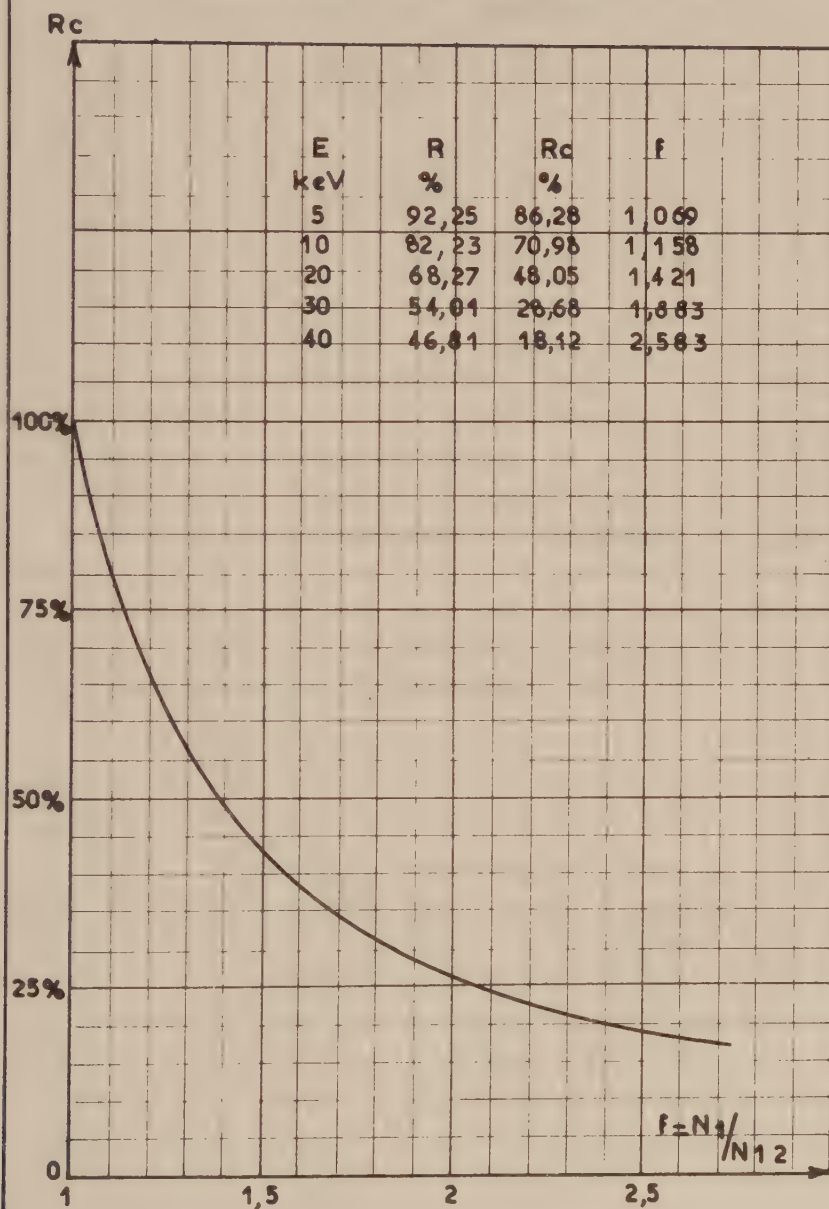
$E_{\text{max}} = 150 \text{ keV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL



$^{14}_6\text{C}$ E. max = 150 keV

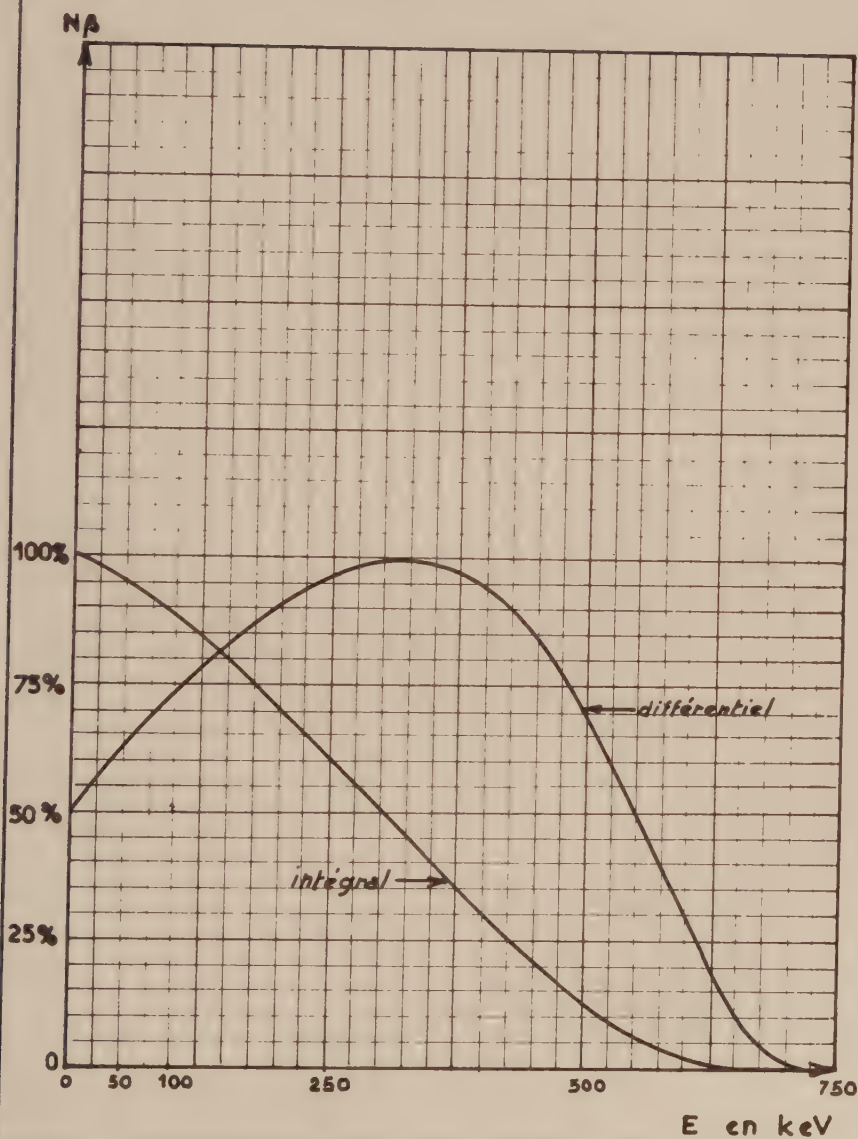
COURBE DE RENDEMENT



$^{36}_{17}\text{Cl}$

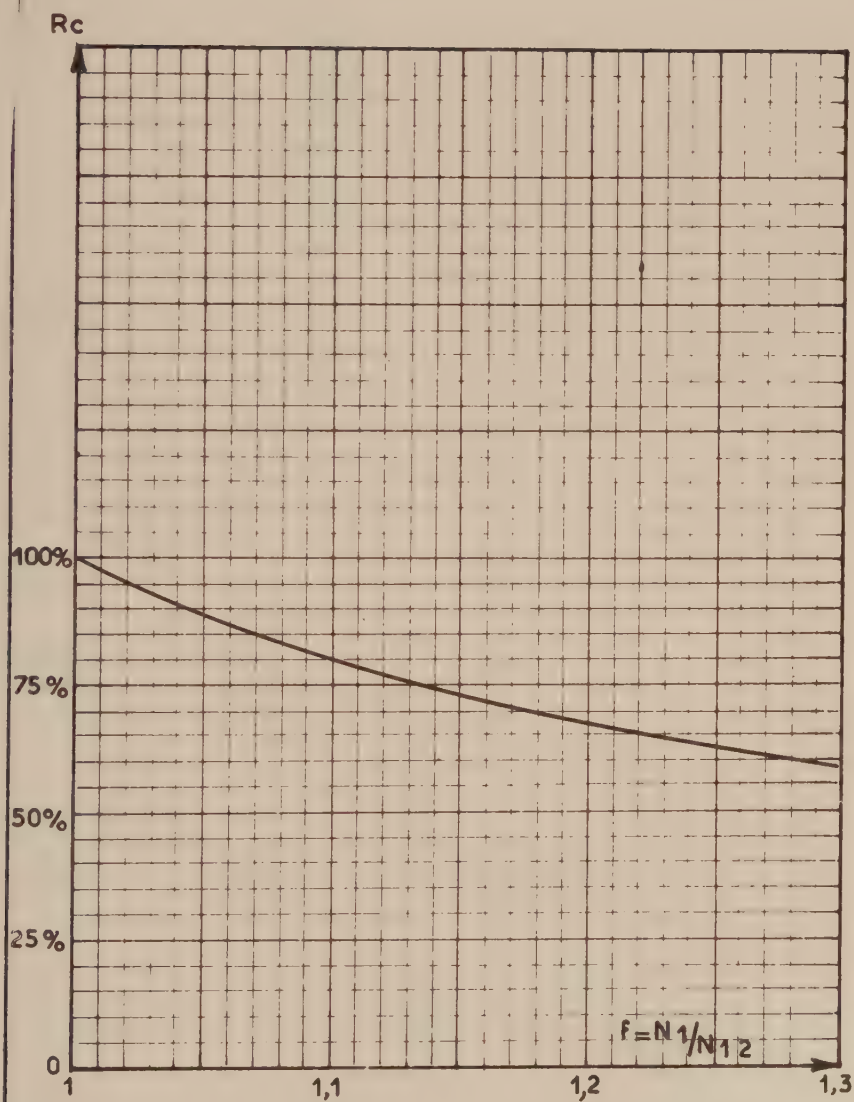
$E_{\text{max}} = 714 \text{ keV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL



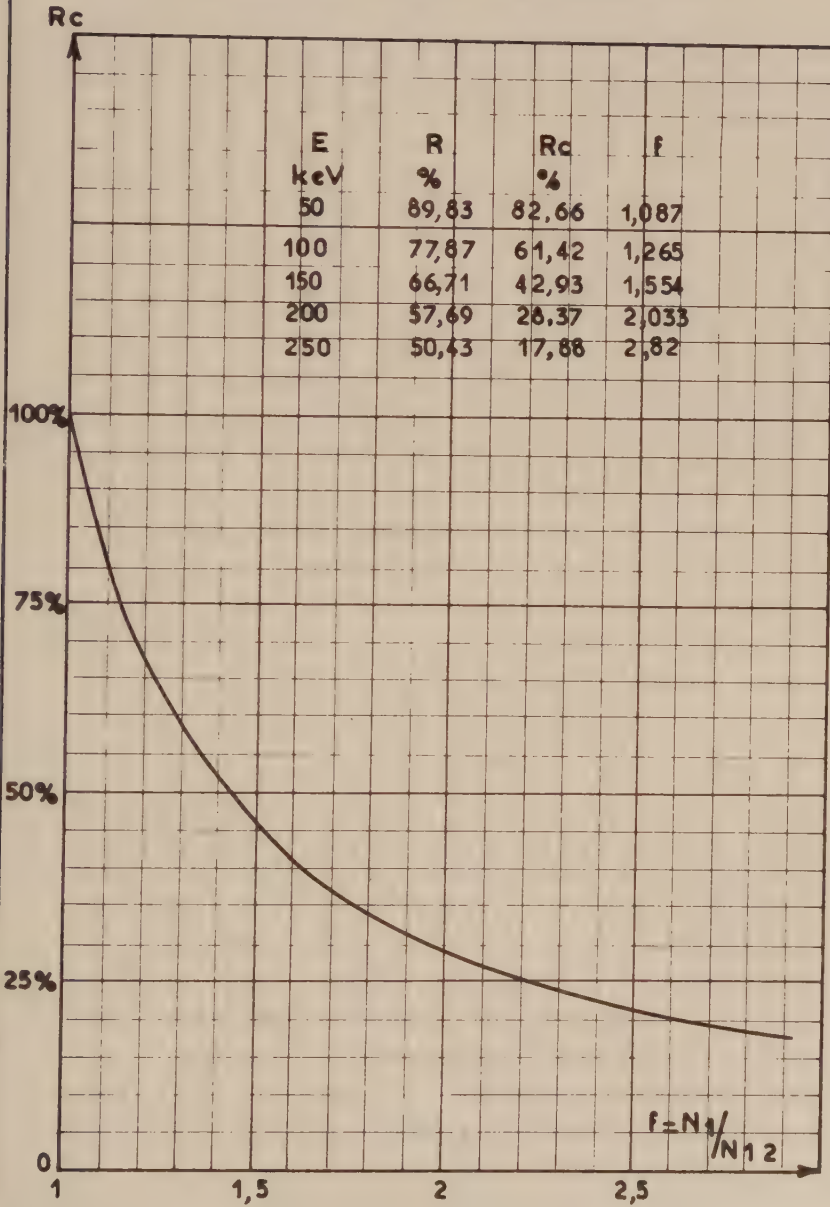
$^{36}_{17}\text{Cl}$ E max 714 keV

COURBE DE RENDEMENT



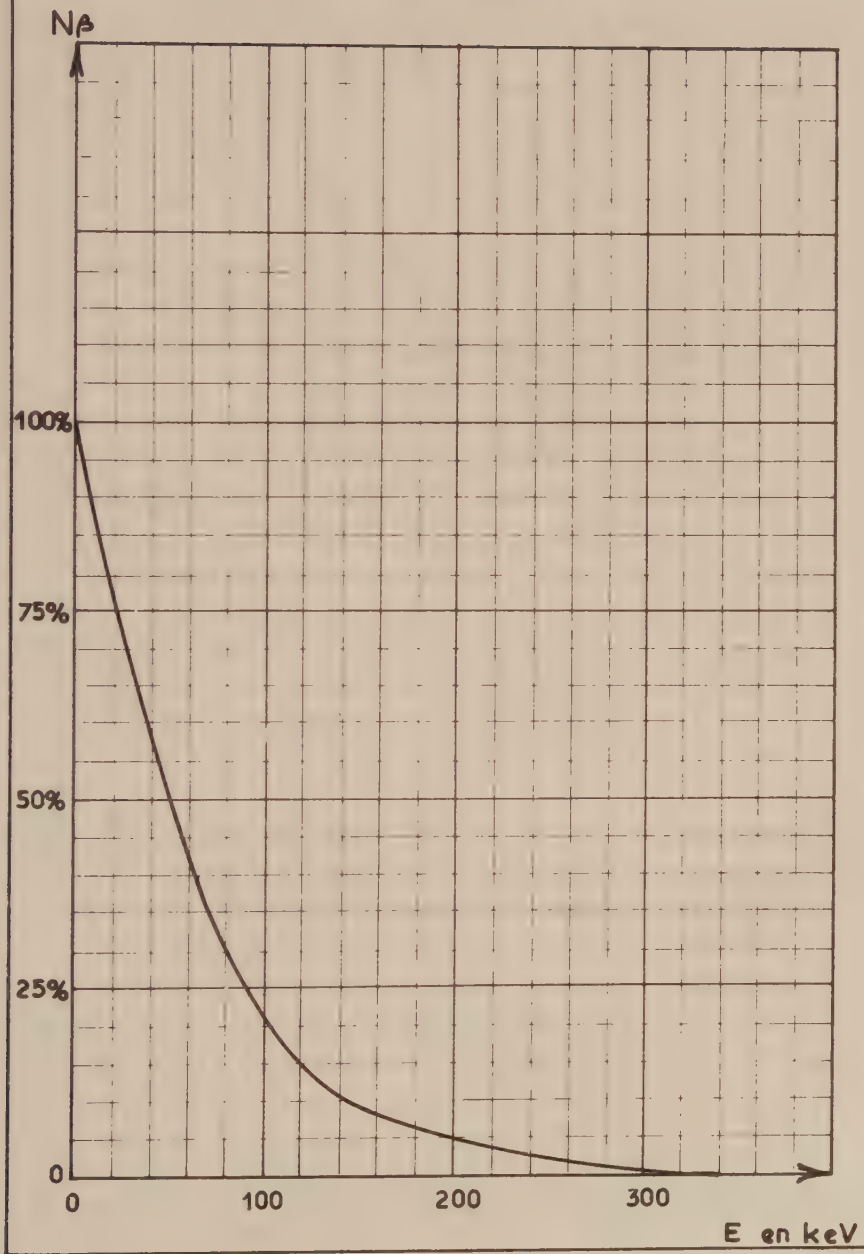
$^{36}_{17}\text{Cl}$ E. max = 714 keV

COURBE DE RENDEMENT



⁹⁵₄₀Zr E max=380 keV
⁹⁵₄₁Nb E max=158 keV

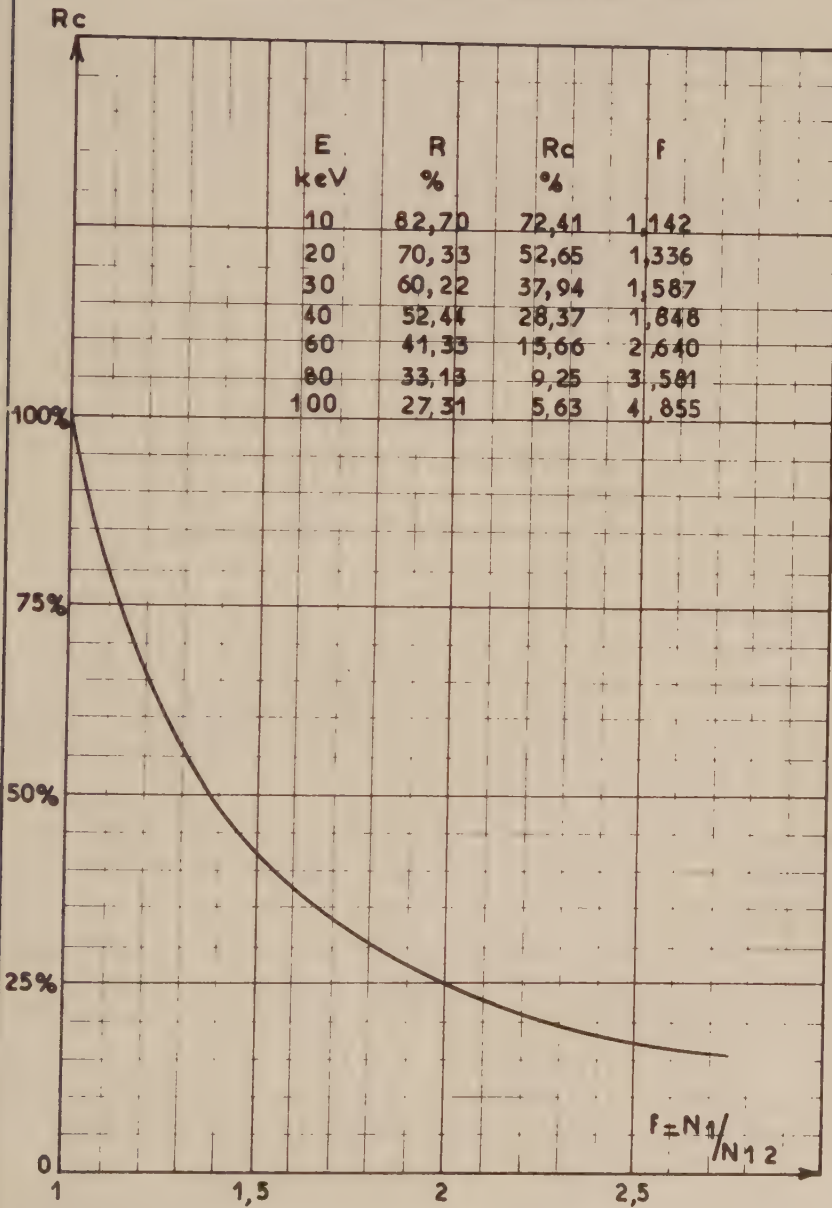
SPECTRE INTÉGRAL



⁹⁵
40 **Zr** E. max = 380 keV

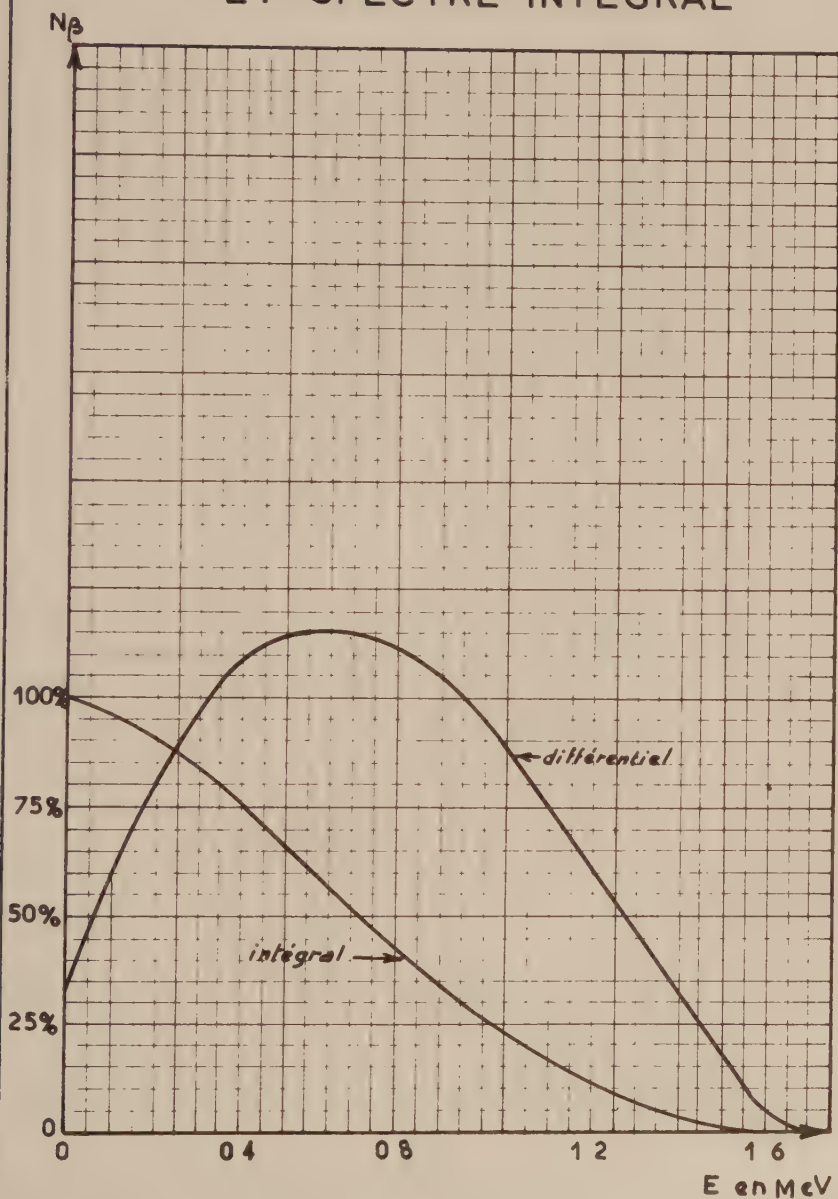
⁹⁵
41 **Nb** E max = 158 keV

COURBE DE RENDEMENT



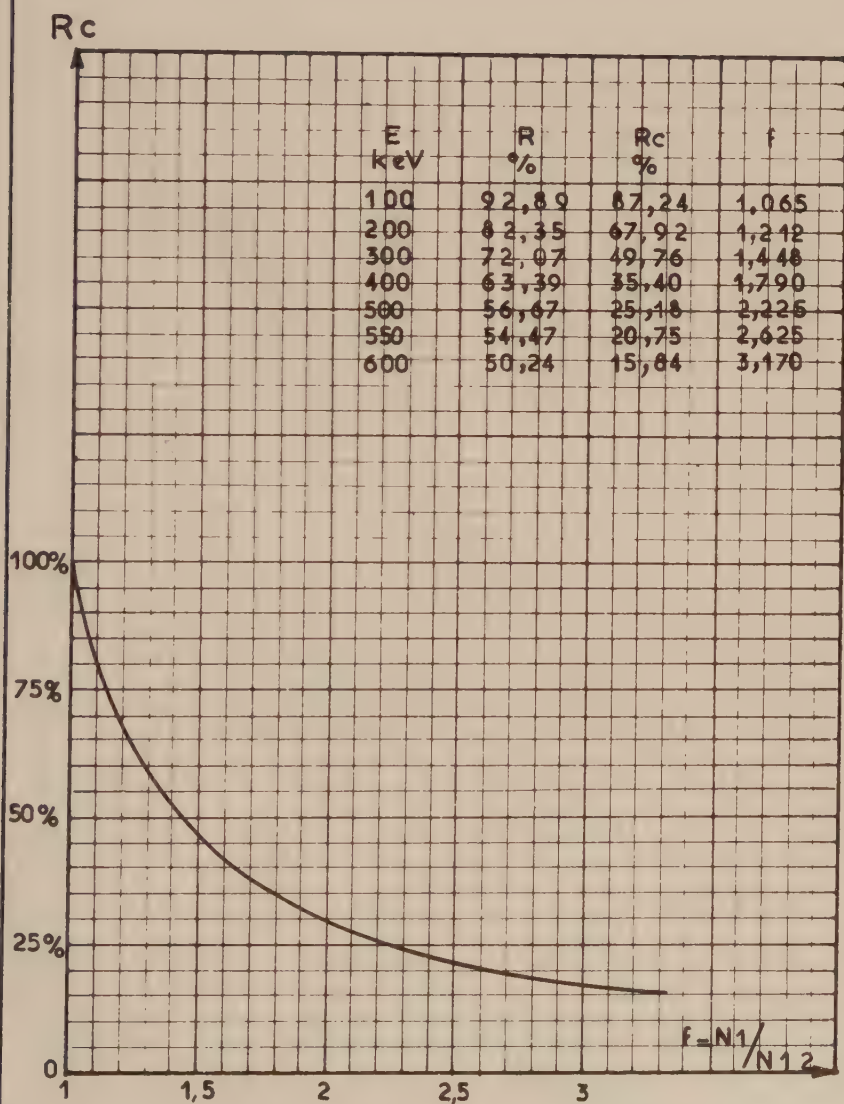
$^{32}_{15}\text{P}$. $E_{\text{max}} = 1.71 \text{ MeV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL



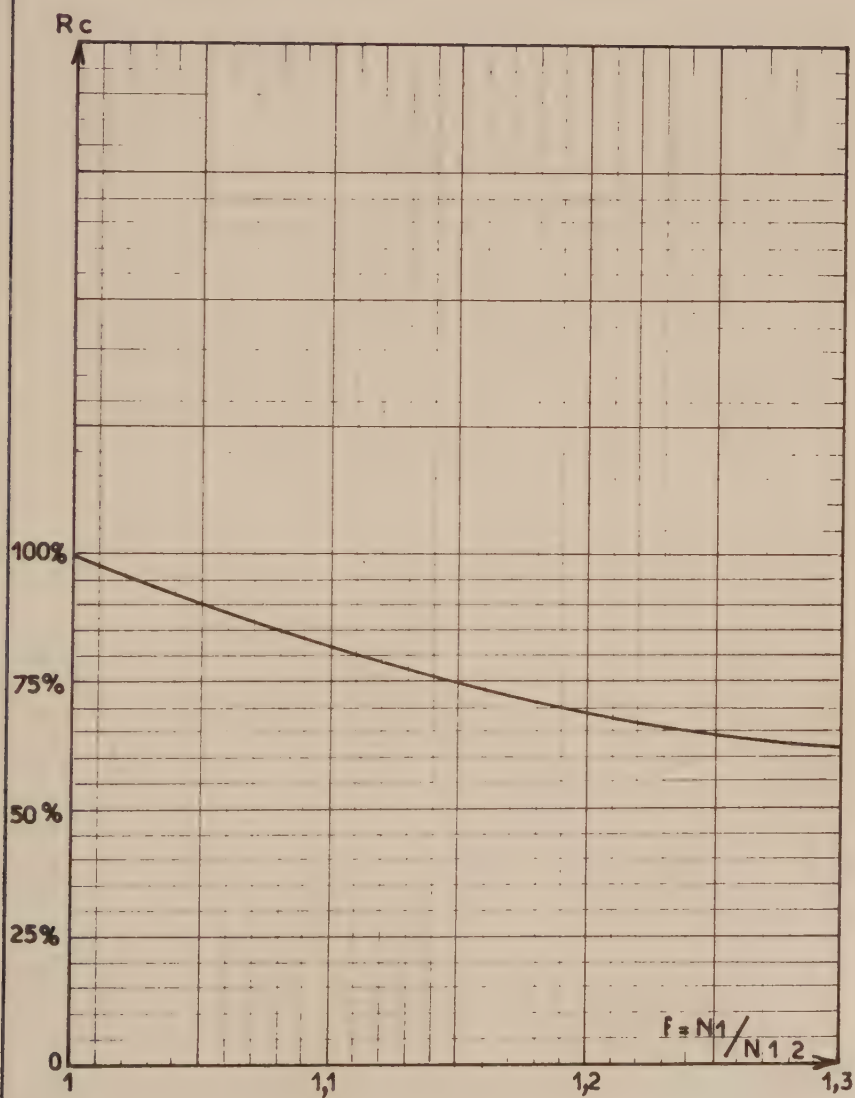
$^{32}_{15}\text{P}$ $E_{\text{max}} = 1,71 \text{ MeV}$

COURBE DE RENDEMENT



$^{32}_{15}\text{P}$ $E_{\text{max}} = 1,707 \text{ MeV}$

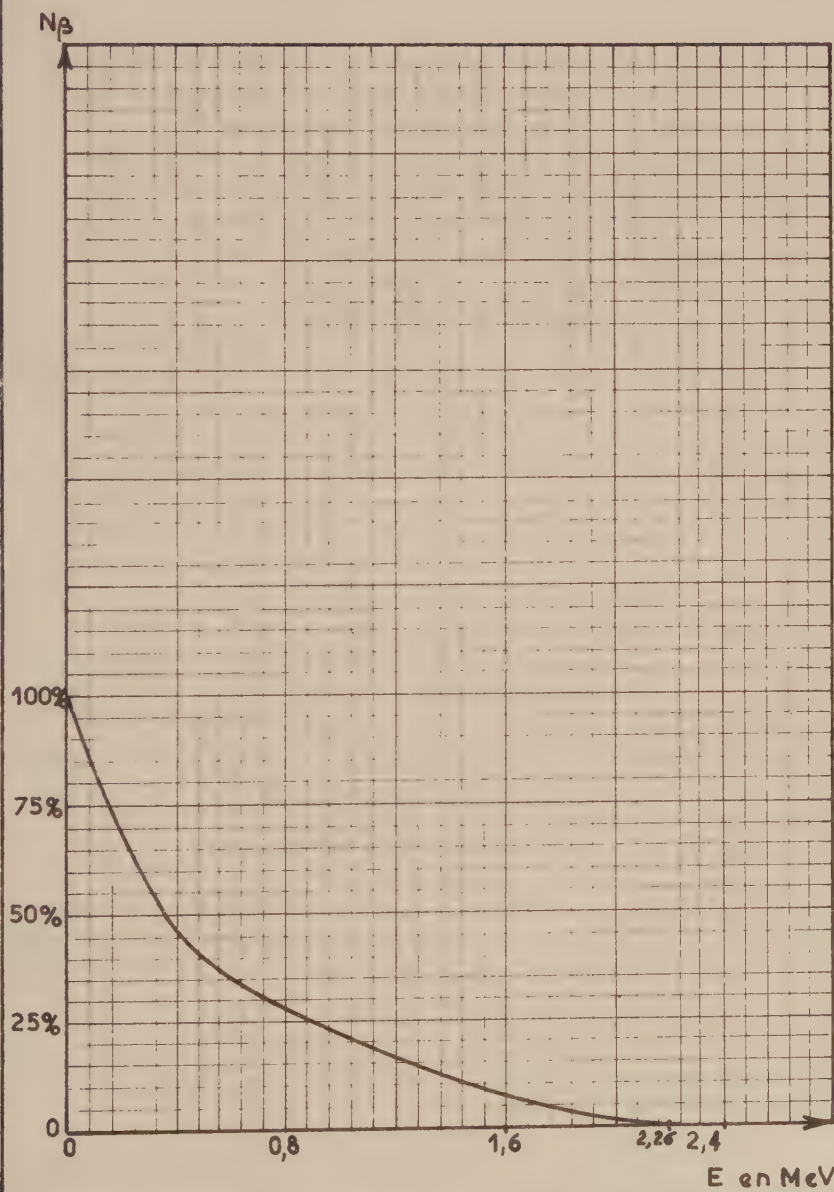
COURBE DE RENDEMENT



$^{90}_{38}\text{Sr}$ $E_{\text{max}} = 0,55\text{MeV}$

$^{90}_{39}\text{Y}$ $E_{\text{max}} = 2,26\text{MeV}$

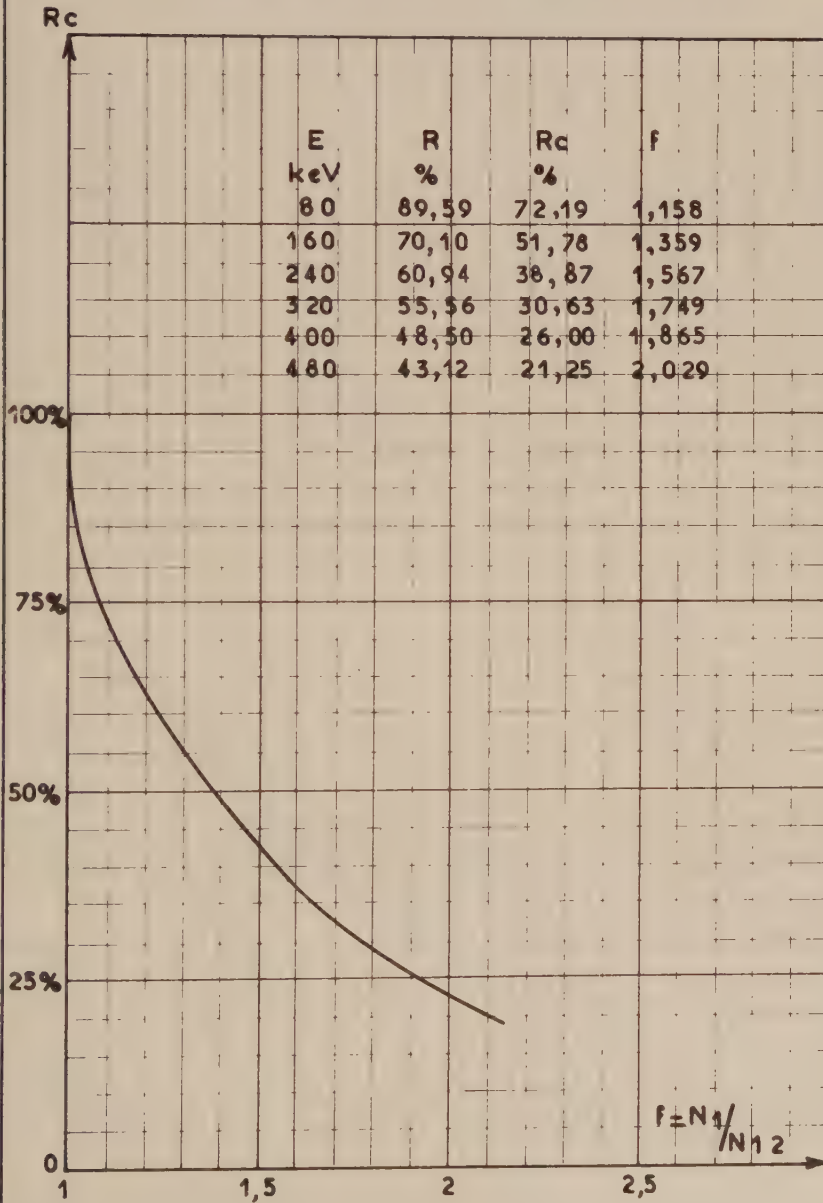
SPECTRE INTÉGRAL



$^{90}_{38}\text{Sr}$ $E_{\text{max}} = 0,55\text{MeV}$

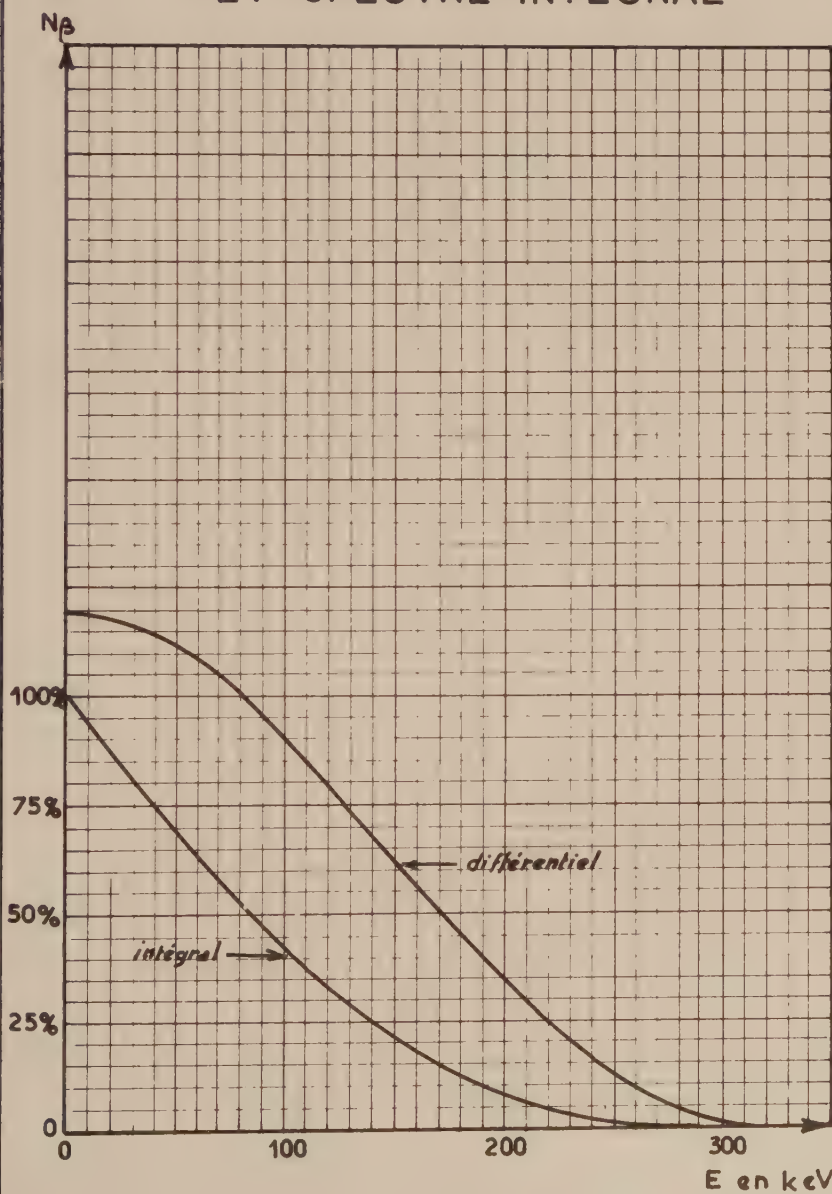
$^{90}_{39}\text{Y}$ $E_{\text{max}} = 2,26\text{MeV}$

COURBE DE RENDEMENT



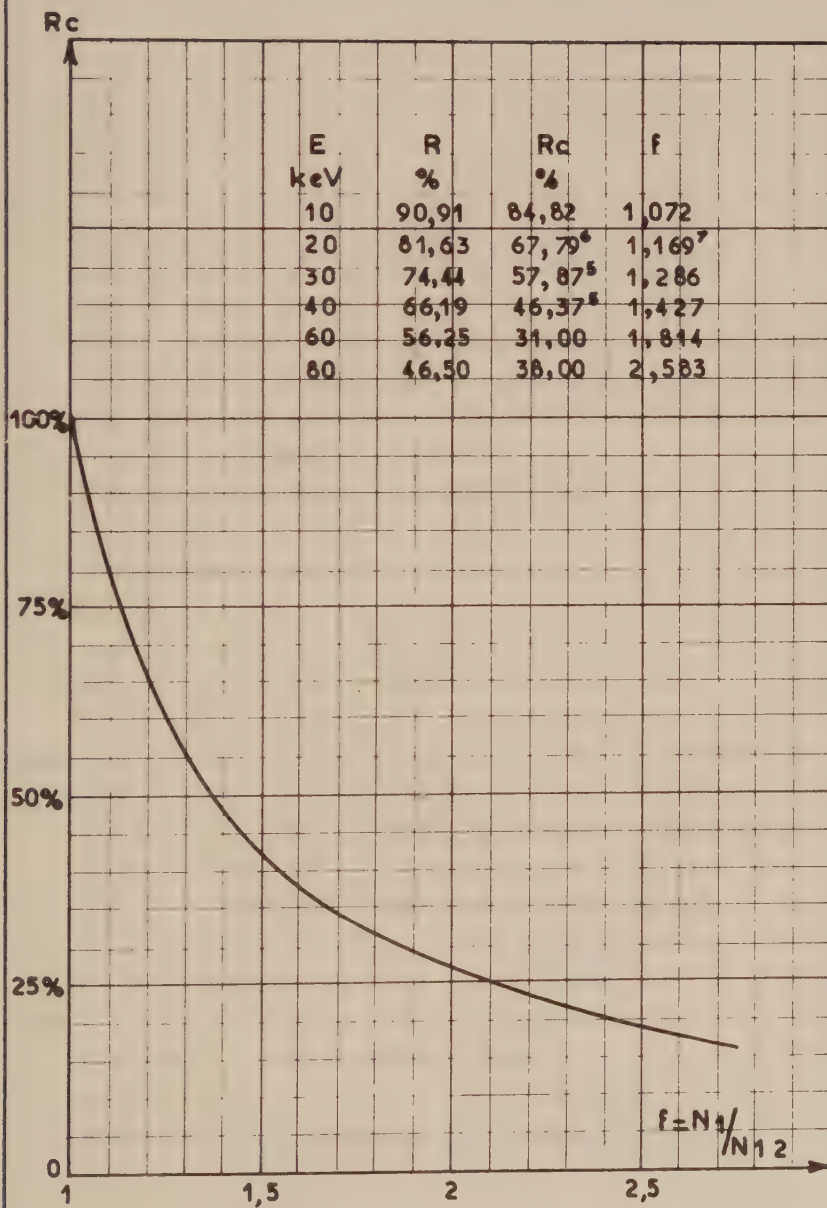
$^{60}_{26}\text{Co}$ $E_{\text{max}} = 312 \text{ keV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL



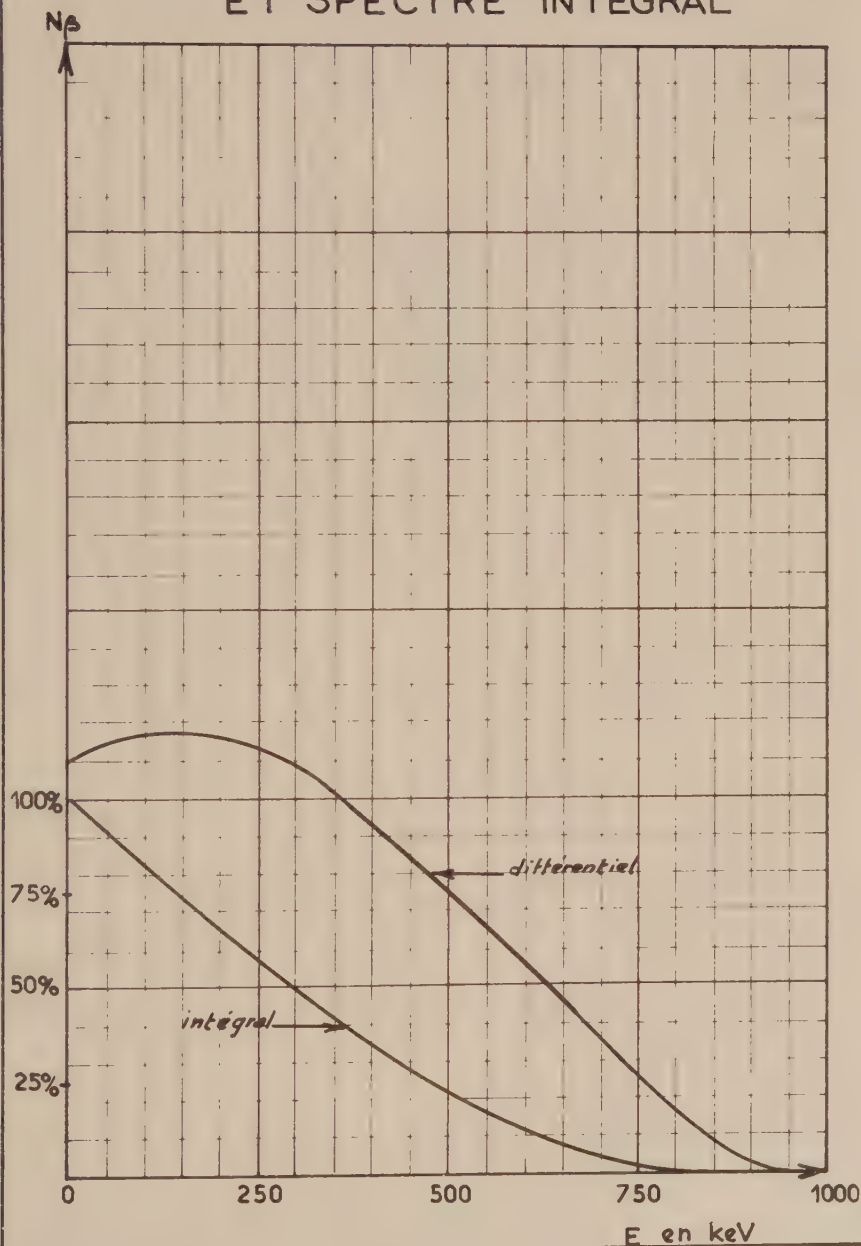
$^{60}_{26}\text{Co}$ E. max = 312 keV

COURBE DE RENDEMENT



$^{198}_{79}\text{Au}$ $E_{\text{max}} = 960 \text{ keV}$

SPECTRE DIFFÉRENTIEL ET SPECTRE INTÉGRAL

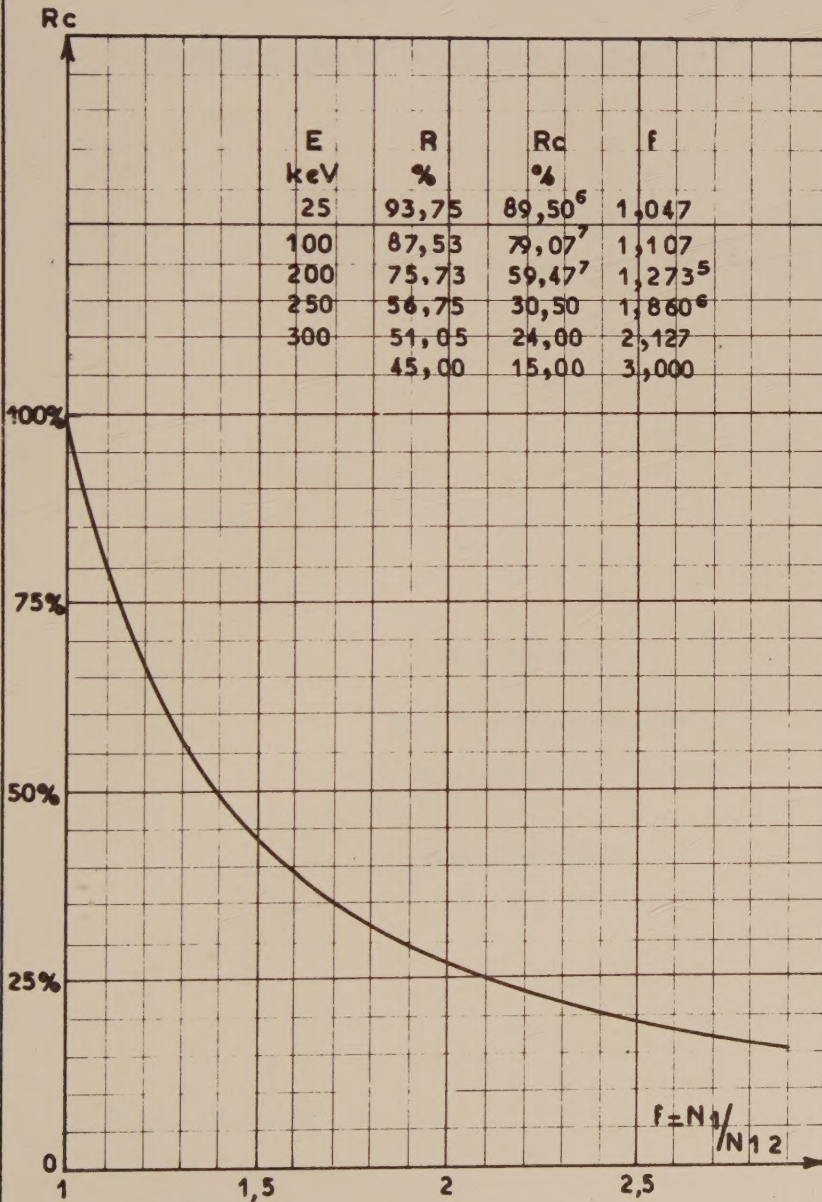


198

79 **Au**

E. max = 960 keV

COURBE DE RENDEMENT



DEUXIEME THESE

PROPOSITIONS DONNEES PAR LA FACULTE

Utilisation de la spectrographie gamma pour la détection et la mesure des traces de ^{137}Cs et d'autres radioéléments dans l'air, l'eau et les végétaux ».

Vu et approuvé :

Paris, le 15 Décembre 1963

Le Doyen de la Faculté des Sciences

Marc ZAMANSKY

Vu
et Permis d'imprimer

Le Recteur de l'Académie
de Paris

Jean ROCHE

